

METHOD AND APPARATUS FOR DIFFUSIVE TRANSFER BETWEEN IMMISCIBLE FLUIDS

Patent Number: WO9612541

Publication date: 1996-05-02

Inventor(s): BULL ADRIAN JAMES (GB); SHAW JOHN EDWARD ANDREW (GB); WESTWOOD LYN (GB); BRENNAN DAVID EDWARD (GB); HOLMES ROBERT GEORGE GODFREY (GB); SIMPER ADRIAN MARK (GB); SIMPSON RICHARD IAIN (GB); TURNER ROBERT EDWARD (GB)

Applicant(s): BULL ADRIAN JAMES (GB); SHAW JOHN EDWARD ANDREW (GB); WESTWOOD LYN (GB); BRENNAN DAVID EDWARD (GB); CENTRAL RESEARCH LAB LTD (GB); HOLMES ROBERT GEORGE GODFREY (GB); SIMPER ADRIAN MARK (GB); SIMPSON RICHARD IAIN (GB); TURNER ROBERT EDWARD (GB)

Requested Patent: WO9612541

Application Number: WO1995GB02489 19951020

Priority Number(s): GB19940021313 19941022; GB19950011813 19950610; GB19950011904 19950612

IPC Classification: B01D11/04; B01D61/28; G01N1/40

EC Classification: B01D11/04, B01D11/04B, B01D61/24, B01D61/28, B01J19/00R, G01N1/40, G01N25/14, G01N27/447B4, G01N30/60Equivalents: AU3703195, AU699883, CA2203282, CN1087960B, CN1162928, EP0790849 (WO9612541), B1, JP10507962T

Cited patent(s): FR2196831; US5114579; DE3239290; DE2039051; US4208284; US4789468

Abstract

In order to facilitate diffusive transfer of an entity such as a solute between immiscible fluids and subsequent separation of the fluids without mixing, method and apparatus are disclosed having first and second fluid flow paths (11, 12) carrying first and second immiscible fluids, the flow paths communicating with one another in an interface region (16) in which the fluids contact one another and a stable open interface is formed. Diffusive transfer takes place across the interface, and subsequently the fluids flow away from the interface without mixing. The width of the flow paths in the interface region measured normal to the interface lies between 10 and 500 micrometres.

Data supplied from the esp@cenet database - I2

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公表特許公報 (A)

(11) 特許出願公表番号

特表平10-507962

(43) 公表日 平成10年(1998)8月4日

(51) Int.Cl.^{*}
B 01 D 11/04
61/28
G 01 N 1/10

識別記号

F I
B 01 D 11/04
61/28
G 01 N 1/10

Z
F

審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 57 頁)

(21) 出願番号 特願平8-513729
(86) (22) 出願日 平成7年(1995)10月20日
(85) 翻訳文提出日 平成9年(1997)4月22日
(86) 國際出願番号 PCT/GB95/02489
(87) 國際公開番号 WO96/12541
(87) 國際公開日 平成8年(1996)5月2日
(31) 優先権主張番号 9421313.9
(32) 優先日 1994年10月22日
(33) 優先権主張国 イギリス(GB)
(31) 優先権主張番号 9511813.9
(32) 優先日 1995年6月10日
(33) 優先権主張国 イギリス(GB)

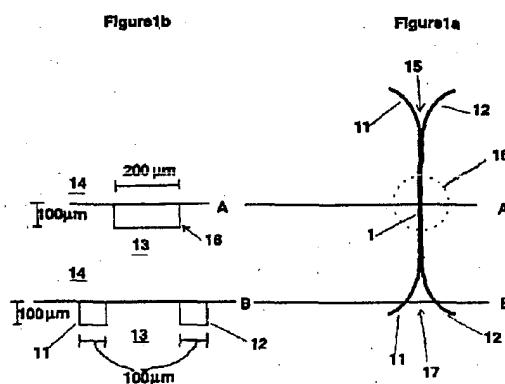
(71) 出願人 セントラル リサーチ ラボラトリーズ
リミティド
イギリス国, ミドルセックス ユーピー3
1エイチエイチ, ヘイズ, ダウリー ロ
ード
(72) 発明者 ホルムス, ロバート ジョージ ゴドフレ
イ
イギリス国, ランカシャー ピーアール4
3ディーエス, ブリストン, カークハ
ム, ウェシャム, カール ロード 18
(74) 代理人 弁理士 石田 敏 (外3名)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 不混和性流体間の拡散移動のための方法及び装置

(57) 【要約】

不混和性流体間の溶質のような存在物の拡散移動及びそ
の後の混合を伴わない流体の分離を促進させるために、
第1及び第2不混和性流体を保有し、流路が流体が互い
に接触する界面領域(16)で互いに連通して、安定な
開放界面が形成される第1及び第2流体流路(11、1
2)を有する方法及び装置を開示する。拡散移動は界面
を通して起こり、その後流体は混合することなく界面か
ら流れ去る。界面に対して法線方向で測定される界面領
域での流路の幅は、10~500マイクロメートルである。



【特許請求の範囲】

1. 第1不混和性流体と及び第2不混和性流体の間での工程を実施するための装置であって、第1及び第2不混和性流体のそれぞれの流体流れを通過させることができる第1及び第2流路を具備し、前記流路の一部が互いに密着又は隣接して配置されて流体がそこに安定な開放界面を形成し得るような領域で互いに連通し、界面領域において少なくとも第1流路が10~500マイクロメートルの範囲内の界面に対して法線方向の幅を有する装置。
2. 第2流体流路が10~500マイクロメートルの範囲内の界面に対して法線方向の幅を有する請求項1記載の装置。
3. 第1流体からの存在物を第1流体とは不混和性の第2流体に移動させる工程を実施するための装置であって、第1及び第2不混和性流体のそれぞれの流体流れを通過させることができる第1及び第2流路を具備し、溝の一部が、互いに隣接又は密着して配置され、且つ流体がそこに安定な開放界面を形成し得るような領域で互いに連通し、上記界面領域に隣接し、且つ、界面に対して法線方向の少なくとも第1流路の幅(1)が不等式：

$$l^2 < D \cdot t \cdot x^{-1}$$

(式中、Dは第1流体内の移動する存在物の拡散係数であり、tは流体部分が界面領域に位置を占める0.1~100秒の時間であり、xは0.005以上の定数である)により決定される装置。

4. 上記界面領域に隣接し、界面に対して法線方向の第2流路の幅(1)が以下の不等式：

$$l^2 < D \cdot t \cdot x^{-1}$$

(式中、Dは第2流体中の移動する存在物の拡散係数であり、tは流体部分が界面領域に位置を占める0.1~100秒の時間であり、x

は0.005以上の定数である)

により決定される請求項3記載の装置。

5. xが0.01以上の値を有する請求項3又は4のいずれか一項に記載の装置。

6. xが0.1以上の値を有する請求項3又は4のいずれか一項に記載の装置。

7. 拡散係数Dが $10^{-13} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ ～ $10^{-9} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ の値を有する請求項3～6のいずれか一項に記載の装置。

8. 拡散係数Dが $10^{-11} \sim 10^{-10} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ の値を有する請求項7記載の装置。

9. 流体流れに対して法線方向の界面領域の高さが5～200マイクロメートルである請求項1～8のいずれか一項に記載の装置。

10. 界面領域の高さが5～30マイクロメートルである請求項9記載の装置。

11. 界面が流体流れに対して法線方向に隣接流路の高さの20分の1以上の高さを有する請求項1～10のいずれか一項に記載の装置。

12. 界面を横切る第1及び第2液体間の差圧の範囲に対して開口部内に界面を固定するために、第1流路の表面と第2流路の表面が異なる潤湿特性を有する異なる材料から成る請求項1～11のいずれか一項に記載の装置。

13. 2つの流体間の界面を横切る差圧の範囲に対して界面を所望の位置に固定させるために開口部の領域内の流路表面が界面の所望の位置に隣接して等高を示す請求項1～12のいずれか一項に記載の装置。

14. 第1及び第2流路が共通支持体の表面に溝として蝕刻されるか別の方法で形成され、そして、第1及び第2流路を溝に限定す

るためにプレート部材が支持体の表面に固定された請求項1～13のいずれか一項に記載の装置。

15. 第1及び第2流路が形成された反対面を有する第1及び第2支持体部材を含む請求項1～13のいずれか1項に記載の装置。

16. 第1流路が第1支持体部材の表面に溝又はくぼみとして形成され、第2流路が第2支持体部材の表面に溝又はくぼみとして形成され、上記表面が互いに向かい合うように配置され、上記流路が少なくとも部分的に重なり合わさって界面領域を画定している請求項15記載の装置。

17. 第1及び第2流路を形成する上記溝又はくぼみが互いに部分的に分岐して溝又はくぼみの寸法より小さい寸法の界面領域を画定している請求項16記載の装置。

18. 第1及び第2支持体部材が、所定距離の間隔を置いて互いに平行に配置

され、且つ、開口部の各第1及び第2列を具備し、列を成す開口部を互いに整合させ、それにより整合している開口部間に延びる第1流体流路と支持体部材間を平行に延びる第2流体流路とを画定する請求項15記載の装置。

19. 第1流体と第2流体の間の1つ以上の界面が界面領域に存在するように第2流体流路が形成され、そして、界面領域における第1流路の幅は、第1流路が最も近い界面から(i) 10~500マイクロメートル以内、又は(ii) 不等式 $1^2 < D \cdot t \cdot x^{-1}$ (式中、記号は前記と同様である)で決定される距離(1)より遠くにないよう存在するようなものである装置。

20. 第3流体を有する第3流路を具備し、第1及び/又は第2及び/又は第3流体間に所定の界面を提供するための1つ又はそれ以上の界面領域が提供された請求項1~19のいずれか1項に記載の装置。

21. 第3流体流路が第1及び/又は第2流体流路と同じ寸法で画定された請求項20記載の装置。

22. 検知するか、モニタリングするか及び/又は電場、磁場又は電磁場を1つ又はそれ以上の流体に印加するために流路内に又は流路に隣接して取り付けられる電極手段を具備する請求項1~21のいずれか一項に記載の装置。

23. 多数の処理加工素子を具備し、各処理加工素子が請求項1~22のいずれか一項に記載の装置を構成する多量の第1及び第2不混和性流体を処理加工するための系。

24. 流体を各処理加工素子の入口から出口に供給するためのマニホールド手段を具備する請求項23記載の系。

25. 上記処理加工素子が一連の積層した支持体上に形成され、各処理加工素子の第1及び第2流路がこの積層した支持体を通して延びる流体口と連通する請求項24記載の系。

26. 第一組の第1流体流路及び第二組の第2流体流路を具備し、第1流体流路に対してはその長さ方向に沿って間隔を置いて配置された一連の界面領域が存在するように組の流路が第2流体流路と連通し合い、その逆も成り立つ請求項23記載の系。

27. 第1及び第2の重ね合わされた支持体を具備し、第一組の第1流体流路が1つの支持体の表面に形成され、第二組の流体流路が第2支持体の接触面に配置された請求項26記載の系。

28. 第2流体流路がジグザグの、曲がりくねった又は渦巻き状の形状を有して第1流体流路の長さに沿った一連の界面領域に第1流体流路を画定する請求項28記載の系。

29. 第1不混和性流体と第2不混和性流体の間の工程の実施する方法であつて、

- 1) 互いに隣接又は密着して配置された部分を有し、且つ、流体が互いに接触し得る領域で互いに連通する第1及び第2流路を提供すること；
- 2) 少なくとも前記領域で両流体の流れが本質的に層状であり、且つ、安定な開放界面が流体間に形成されるように、前記第1及び第2流路のそれぞれに第1及び第2不混和性流体を流すこと；
- 3) 流体内の拡散輸送により流体間の前記界面で所望の存在物の実質的な移動を可能にさせること；そして
- 4) 流体を混合させずにそれぞれの流路の界面領域から流体を流出させること；

を含む方法。

30. 第1流体から第1流体と不混和性の第2流体への少なくとも1つの拡散性存在物を移動させる工程を実施する方法であつて、

- 1) 流体界面が互いに接触し得る領域で互いに連通する第1及び第2流路を提供すること；
- 2) 少なくとも界面領域で両流体が本質的に層状であり、且つ、安定な開放界面が流体間に形成されるように、前記第1及び第2流路のそれぞれに第1及び第2流体を流すこと；
- 3) 界面領域で移動し得る前記拡散性存在物の総量の少なくとも1%が移動する場合には、以下の不等式：

$$l^2 < D \cdot t \cdot x^{-1}$$

(式中、Dは第1流体中の拡散性存在物の拡散係数であり、tは界面領域に第1流体の一部が位置を占める0.1~100秒の時間であり、xは0.005以上の定数であり、lは前記界面領域に隣接し界面に対して法線方向の第1溝の幅である)
が適用され；そして

4) 流体を混合させずにそれぞれの流路の界面領域から流体を流出させること

；

を含む方法。

3 1. 第2流体及び第2流体流路に関しては、以下の不等式：

$$l^2 < D \cdot t \cdot x^{-1}$$

(式中、Dは第2次流体中の拡散性存在物の拡散係数であり、lは前記界面領域に隣接し、界面に対して法線方向の第2流路の幅である)

適用できる請求項30記載の方法。

3 2. xの値が0.01以上である請求項30又は31のいずれか一項に記載の方法。

3 3. xの値が0.1以上である請求項30又は31のいずれか一項に記載の方法。

3 4. 拡散係数Dが $10^{-13} m^2 s^{-1} \sim 10^{-9} m^2 s^{-1}$ の値を有する請求項30~33のいずれか一項に記載の方法。

3 5. 拡散係数Dが $10^{-11} \sim 10^{-10} m^2 s^{-1}$ の値を有する請求項34記載の方法。

3 6. 界面領域、界面に対して法線方向の第1及び／又は第2流路の幅が10~500マイクロメートルである請求項30~35のいずれか一項に記載の方法。

3 7. 界面領域で1つ以上の界面が第1流体流路により形成されるように第2流路が形成され、界面領域における第1流体流路の幅が、第1流路の一部が(i) 10~500マイクロメートル以内、又は(ii) 上記不等式で決定される距離(1)より界面から遠くにないよう存在するようなものである請求項30~36のいずれか一項に記載の方法。

3 8. 第3流体流路を含み、第1、第2及び／又は第3流体流路間に選択された界面領域を提供し、前記第3流体流路に第3流体を流して、そこを通る少なく

とも1つの所定の存在物を拡散させるた

めに第1、第2及び第3流体間に選択された界面を形成させる請求項29～37
のいずれか一項に記載の方法。

39. 流体が、気体、超臨界流体及び液体から選択され、選択された流体が互
いに不混和性である請求項29～38のいずれか一項に記載の方法。

40. 第1、第2及び第3流体が各々液体である請求項39記載の方法。

41. 第1流体が水性液体溶液であり、且つ、第2流体が有機液体であるか、
又はその逆である、請求項29～40のいずれか一項に記載の方法。

42. 処理が水性溶液から有機液体への又はその逆の少なくとも1つの溶質の
溶媒抽出である請求項41記載の方法。

43. 1つ又はそれ以上の流体が流路内で又は流路に隣接して電極手段により
検知又はモニタリングされる請求項29～42のいずれか一項に記載の方法。

44. 電場、磁場又は電磁場を1つ又はそれ以上の流体に印加することを含む
請求項30～45のいずれか一項に記載の方法。

45. 流体流れに対して法線方向の界面領域の高さが5～200マイクロメートル
である請求項29～44のいずれか一項に記載の方法。

46. 前記第1界面領域の高さが5～30マイクロメートルである請求項45記
載の方法。

47. 界面が、流体流れに対して法線方向に、隣接する流路の高さの20分の
1又はそれ以上の高さを有する請求項29～46のいずれか一項に記載の方法。

48. 界面を横切る第1及び第2液体間の差圧の範囲に対して開口部内に界面
を固定するために、第1及び第2流路の表面が異なる

湿潤特性を有する異なる材料から成る請求項29～47のいずれか一項に記載の
方法。

49. 2つの流体間の界面を横切る差圧の範囲に対して界面を所望の位置に固
定する開口部の領域内の流路表面が界面の所望の位置に隣接して等高を示す請求
項29～48のいずれか一項に記載の方法。

50. 第1及び第2流路が共通支持体の表面に溝として蝕刻されるか別 の方法で形成され、そして第1及び第2流路を溝に限定するためにプレート部材が支持体の表面に固定される請求項29～49のいずれか一項に記載の方法。

51. 第1及び第2流路が形成された反対面を有する第1及び第2支持体部材を具備する請求項29～49のいずれか一項に記載の方法。

52. 第1流路が第1支持体部材の表面に溝又はくぼみとして形成され、第2流路が第2支持体部材の表面に溝又はくぼみとして形成され、上記表面が互いに向かい合うように配置され、上記流路が少なくとも部分的に重なり合わされて界面領域を画定している請求項51記載の方法。

53. 第1及び第2流路を形成する上記溝又はくぼみが互いに部分的に分岐して溝又はくぼみの寸法より小さい寸法の界面領域を画定している請求項52記載の方法。

54. 上記領域が单一処理加工素子を形成し、各処理加工素子内で流体を同時に処理加工し得る多数のこのような処理加工素子を提供する請求項29～53のいずれか一項に記載の方法。

55. 流体を各処理加工素子の入口から出口に供給するためのマニホールド手段を含む請求項54記載の方法。

56. 上記処理加工素子が一連の積層した支持体に形成され、各

処理加工素子の第1及び第2流路が積層した支持体を通して延びる流体口と連通している請求項55記載の方法。

57. 第一組の第1流体流路及び第二組の第2流体流路を具備し、第1流体流路に対してはその長さ方向に沿って間隔を置いて配置された一連の界面領域が存在するように前記第1及び第2組の流路が第3流体流路と連通し合い、その逆も成り立つ請求項54記載の方法。

58. 第1及び第2の重ね合わされた支持体を具備し、第一組の第1流体流路が1つの支持体の表面に形成され、第二組の流体流路が第2支持体の接触面に配置されている請求項57記載の方法。

59. 第2流体流路がジグザグの、曲がりくねった又は渦巻き状の形状を有し

て第1流体流路の長さに沿った一連の界面領域に第1流体流路を画定している請求項54記載の方法。

【発明の詳細な説明】

不混和性流体間の拡散移動のための方法及び装置

発明の詳細な説明

産業上の利用分野

本発明は第1及び第2不混和性流体間での工程、例えばある流体から別の流体への溶媒抽出を実施するための方法及び装置に関する。

従来の技術

化学産業において、化学物質を精製又は分析する一般的技法は交換法である。

溶媒抽出は、1つ又はそれ以上の成分の、その成分（溶質）が溶解している一相（流体）から第2不混和性相への選択的移動に依る。通常、これは、重力を用いた2相の物理的混合とその後の分離により達成される。2相を十分に混合するほど、液滴が小さくなつてその表面積がより大きくなり、且つ相内の拡散距離が短くなるために、移動過程が迅速に進行することが判明している。しかしながら、相の分離に要する時間は十分に混合するほど長くなり、それゆえ溶質移動の望ましい効率に対して、分離時間は許容できないほど長くなる可能性があり、これがこの方法の主な欠点である。

米国特許出願第3,758,404号は、繊維の表面に沿つて膜として片方の液体を流动させる一方で、他方の液体をこの膜と接触させて流动させることによる、ある液体の成分の別の液体中への移動を開示している。この方法は2液の分離の問題をある程度まで低減するが、液体は一緒に放出されるので、依然としてその後重力分離を実施

する必要がある。抽出処理及びその後の分離処理の速度及び効率の点で、さらなる改良が望ましい。

仏国特許出願第2196831号は、有機溶液と水溶液との乳濁液の有機部分を分離するための疎水性多孔質膜の使用を開示している。乳濁液の有機部分が膜の細孔を通つて流れ、一方、膜が水溶液に対するバリアを形成するように、圧力が加えられる。しかしながら、乳濁液を2つの純粋な成分に分離するのは元々難しく、開示されている方法はおよその分離を提供し得るだけである。

多孔質膜は、種々の状況で、例えば血液透析、ミキサー沈降タンクでの液／液抽出、遠心分離抽出器で用いられる（例えば、独国特許出願第3239290号、独国特許出願第2039051号及び独国特許出願第0246061号参照）。このような系に伴う問題は、概して、膜の孔との界面で液体が本質的に静止して淀み領域を生じて、溶媒抽出工程が非効率的になることである。特に、これらの欠点は米国特許出願第5114579号に示されており、その中で一方が水溶液を保有し他方が膜を透過する炭化水素溶剤を保有する2つの溝間に位置する膜が開示されている。

本発明の要約

本発明の目的は、相互作用後の流体の分離を容易にするために流体間の物理的混合を阻止しながら、相互作用するように第1不混和性流体と第2不混和性流体とを接触させる方法及び手段を提供することである。

一観点において、本発明は第1不混和性流体と第2不混和性流体の間での工程を実施するための装置であって、第1及び第2不混和性流体のそれぞれの流体流れが通れる第1及び第2流路を具備し、流路の一部が互いに密着して又は隣接して存在し、流体がそこに安

定な開放界面を形成することができるような領域で互いに連通し、界面領域内の少なくとも第1流路が $10\sim500\mu m$ の範囲内の界面に対して法線方向の幅を有する装置を提供する。

界面領域での流体流路に関しては、特別な関係のある3つの寸法がある。即ち、流体流れの方向における長さ、界面に水平であり且つ長さ方向に対して法線方向の高さ、及び界面に対して法線方向の幅である。「法線方向」とは、垂直な又は直交する方向を意味する。

さらに別の観点では、本発明は第1不混和性流体と第2不混和性流体の間での工程を実施する方法であって、以下の：

- 1) 互いに隣接又は密着して配置された部分を有し、且つ、流体が互いに接触し得る領域で互いに連通する第1及び第2流路を提供すること；
- 2) 少なくとも前記領域で両流体の流れが本質的に層状であり、且つ、安定な開放界面が流体間に形成されるように、前記第1及び第2流路のそれぞれに第1

及び第2不混和性流体を流すこと；

3) 流体内の拡散輸送により流体間の前記界面で所望の存在物 (entity) の実質的な移動を可能にすること；そして

4) 流体を混合させずにそれぞれの流路の界面領域から流体を流出させること

；

を含む方法を提供する。

したがって、2つの液がその後に分離する必要のある混合物を形成することを妨げながら、第1及び第2不混和性流体は厳密に制御された条件下で工程の実施のために接触させられるが、本発明によれば、所望の処理を実施するための迅速且つ非常に効率のよい方法及び手段が提供される。

界面領域では、流路を通る流体流れが界面にある流体を絶えず補

充するように、流路は互いに密着又は隣接する。界面に平行な界面での流れが阻止又は制限される配置は、例えば慣用的な膜の孔におけるのと同様に、膜孔に保持される非流動流体が移動中の存在物の拡散のための距離を延ばすので、相間輸送にあまり好ましくない条件を提供する。さらに、このような淀み領域は、相間輸送を妨げる破片や望ましくない生成物を蓄積し得る。最適流体力学のためには、流体は平行な又は交差しない流動方向で一緒に接触するようにされるべきである；界面に流体流れの有意の成分が残存する限り、流路に間隔を開けられてもよい。

流体流れのための流体を保持し得る限り、あらゆる種類の流路又は溝、例えば導管、パイプ、管、側溝、溝、スリット、内腔、又は他のあらゆる種類の道又は通路を用いることができる。

2つの不混和性流体は、一般に液体、例えば水溶液と有機溶液である。しかしながら、2つの流体が互いに不混和性であるかぎりは、一方の又は他方の流体は気体又は超臨界流体であり得る。

2つの流体間のあらゆる種類の相互作用が考えられ、そして既に溶媒抽出が言及されてはいるが、他の相互作用、例えば熱伝達、光エネルギーの伝達、及びあらゆる性質の化学反応、例えば滴定、並びに種々の測定法に必要な予備濃縮又は

サンプリングを行うことができる。これらの例としては、装置と好都合に連結され、同様の手段により、おそらくは同一支持体を使用して作られた微小工学処理された構造物又はその他の構造物内で実施し得る、電気泳動及びクロマトグラフイーのような方法が挙げられる。本装置は、例えば遺伝物質又は他の生体物質の流れが流体中に流入され、その間で所望の交換、付加又は結合が起こる生物学的、生物医学的及び生物科学的用途にも用い得る。多数のこのような工程の一般的特徴は、界面移動速度が各相内の存在物の界面への又は界面からの拡散移動速度

により実質的に制御されることである。

したがって、本発明は、(1) 不混和性流体を、物理的混合物を形成することなく接触させ、次いで迅速に分離させ、そして(2) 一方又は両方の相中に溶解されるかそうでなければ含有される1つ又はそれ以上の成分(存在物)の濃度が相間移動及び1つ又はそれ以上の相での拡散輸送を伴う工程により実質的に変化する方法及び手段を提供するという概念を基礎にする。

「存在物(entity)」とは、ある流体に溶解する物質を意味し、その例としては2つの流体における拡散輸送機構により2つの流体間での移動が可能な熱、電荷、及び他のあらゆる成分又はパラメーターが挙げられる。

本発明に関しては、界面は、限定条件下で流体の移動にかかわらず流体がずっと安定のまま互いに接触する部分に形成される。界面を乱すに十分な量で界面に乱流が存在するべきでない。

表面張力により調整するために、以下で明らかになるように、界面の寸法及び周囲構造物と接触する界面の性質は熟慮されねばならない。

操作効率のために、流体の処理量が最大になるように、流体の一部を短時間界面領域で互いに接触したまま存在する必要がある。界面での流体の連続的更新は、流体とその溶解成分との間の分解的副反応、例えば抽出剤の加水分解が低減され、同様に界面での望ましくない生成物の蓄積も低減されるといった付加的利点を有する。本発明によれば、流体部分は望ましくは1~100秒間、一般的には0.1~100秒間互いに接触したまま存在する必要がある。

界面を通しての拡散移動を伴う工程に関する限り、流体間の成分濃度の実質的

変化には、界面を介して必要成分の拡散が起こるように流体の部分が十分長い間界面領域に存在することが必要である。

安定した界面を形成させるのに要する制約は界面に隣接した層状流動領域の形成を必要とするので、流動方向に対して法線方向の輸送は、通常、分子移動過程によるものであり、最も一般的には拡散的である。 実質的に拡散輸送が短い接触時間（1～100秒のオーダー）内に起こるよう、輸送が起こる界面に直交する第1流体に対する寸法は、接触時間内に移動した存在物の拡散により横断され得る程度の距離に制限される。他の輸送形態、例えば界面を横切る電場勾配に沿う荷電種の移動も起り得る。

したがって、流路の横断面寸法を確定するに際しての主要因子は、該第1及び第2流体内の移動する存在物の拡散係数である。概して、界面を通る存在物の移動速度は、両流体中の移動する存在物の拡散係数に依っている。この状況は、結果的に生じる電流を確定する場合に抵抗の和を考慮すべきである2つの直列抵抗器を通る電流に多少似ている。

極端な場合、第2流体に関する拡散係数は非常に高く、例えば気体の場合には第2流体の拡散速度は有意の因子たりえず、本質的には第1流体の拡散係数だけを考慮する必要があり、それゆえ第1流体流路の幅のみが考慮される。他の極端な場合、第2流体に関する拡散係数は非常に小さく、したがってそれは界面を通過する拡散に対するバリアを効率よく形成するが、この場合有意の拡散には長時間を要し、第2流体流路の幅は有意の因子ではない。

本発明によれば、一般項で公知の数学的変数を用いてより正確に本発明を表現し得ることが認識された。拡散による物質の平衡分布に向かって進行する系に関して、進行は拡散係数D、時間t及び系の形状寸法（これは拡散輸送の方向の特徴的長さlで表される）の関数である。それは拡散過程の進展を示し、無次元変数 $D \cdot t / l^2$ により表示し得る (The Mathematics of Diffusion-J. Crank

-Second Edition 1975, Oxford University Press参照)。

本発明にしたがって起こる有意の拡散に関しては、分解副過程の不在下で非常

に長時間を要し、流体の接触により移動し得る移動可能存在物の少なくとも1%、好ましくは50%又はそれ以上の移動が起こる必要がある。

本発明によれば、 $D t / l^2 > 0.01$ である場合、移動は一般に平衡時の最大の1%~10%の量であり、一方 $D t / l^2 > 0.1$ である場合には、移動は50%又はそれ以上のオーダーである。したがって、移動する成分及び所望の移動時間の拡散係数から、適切な系の寸法を確定できる。拡散係数は、種、媒質及び温度に依存するが、液体媒質中の小~中サイズの分子に関しては、D値は $10^{-9} \sim 10^{-11} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ のオーダーである傾向が認められる。いくつかのポリマーのような高分子量種に関する液体媒質中での拡散係数は、かなり低く、例えば $10^{-13} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ であり、一方、気体の係数は一般に2~3オーダー高い大きさである。一例として、拡散係数 $\sim 10^{-10} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ の種の迅速(~1秒)実質的移動(~50%)に関しては、流体間界面に対して垂直な寸法に対する適切な長さlは、D及びtに関する関連値を $D t / l^2$ に代入し、その値が0.1に等しくなるまで近似することにより出されるべきである。この例は $l = 32 \mu\text{m}$ であるが、しかし実際には $10 \sim 100 \mu\text{m}$ の範囲の寸法が適切である。一般に、迅速且つ実質的な拡散移動に関する上記の式 $D t / l^2$ を用いて算出される適切な寸法は、不混和性流体間の移動を実施するための構造物の幅に関しては $10 \sim 500 \mu\text{m}$ の範囲の平均値となることが分かる。

上記の式を書き直すと以下のようになる：

$$l^2 < D \cdot t \cdot x^{-1}$$

(式中、xは上記のように0.1、0.01、あるいは0.005以上の値を

有する定数である)。

したがって、さらに別の観点によれば、本発明は、第1流体からの存在物を第1流体と不混和性の第2流体に移動させる工程を実施するための装置であって、それぞれ第1及び第2不混和性流体をそれを通して流動させるための第1及び第2流路を具備し、流路の一部が互いに隣接又は密着して配置されて、流体がそこに安定な開放界面を形成し得るような領域で互いに連通しているが、この場合、上記界面領域に隣接し、且つ、界面に対して法線方向の第1流路の幅(1)が以下の不等式：

$$l^2 < D \cdot t \cdot x^{-1}$$

(式中、Dは第1流体中の移動する存在物の拡散係数であり、tは流体部分が界面領域に位置を占める0.1~100秒の時間であり、xは0.005以上の定数である)で示される装置を提供する。

さらに別の観点では、本発明は、第1流体から第1流体と不混和性の第2流体に拡散性存在物を移動させ工程を実施する方法であって、

1) 流体界面が形成され得る領域で互いに連通する第1及び第2流路を提供すること;

2) 少なくとも界面領域で両流体が本質的に層流であり、且つ、安定な開放界面が流体間に形成されるように、前記の第1及び第2流路のそれぞれに第1及び第2流体を流すこと;

3) 界面領域で移動し得る前記拡散性存在物の総量の少なくとも1%が移動する場合には、以下の不等式:

$$l^2 < D \cdot t \cdot x^{-1}$$

(式中、Dは第1流体中の拡散性存在物の拡散係数であり、tは界面領域に第1流体の一部が位置を占める0.1~100秒の時間であり

、xは0.005以上の定数であり、そしてlは前記界面領域に隣接し界面に対して法線方向の第1溝の幅である)

が適用され; そして

4) 流体を混合させずにそれぞれの流路の界面領域から流体を流出させること

;

を含む方法を提供する。

本発明の目的に関しては、第1流体としての一方の流体及び第2流体としての他方の流体の選択は全く任意であり、これは第2流体にも同様に十分適用されると理解される。それは一般的に、両流体における拡散輸送が有意であるという場合であり、この場合、第1及び第2流れの両方に関する幅の選択が同じ不等式に従う。

一方の流路又は溝が他方の溝を流れる流体との相互作用に対して静的溜を有効

に形成するような寸法を有することは、本発明の範囲内である。しかしながら、どちらかの又は両方の溝に流れが必要な場合には、流れを有する溝は、本質的に層状の流れを界面に隣接した領域で強制的に起こさせるのに十分に小さい寸法である必要がある。液体間の界面は過度に乱されない限りにおいて、制御された程度の乱流が一方又は両方の液体中に導入されることは、本発明の範囲内である。乱流による流体間の界面の乱れはこのようにして阻止される。2つの流体の一方が気体である場合、界面に密着したその流体内にやや中等度の乱れが存在することは許容可能である。

界面領域は、2つの流体間の混合を促すことなく、種の移動を可能にする。ほとんどの場合、両相は連続的に流動するとみなされる。しかしながら、一方又は両方の相を律動的に送ることが選択的であることが立証されている状況がある。

2つの流体相の系では、界面の安定性は2相間の差圧により制限される。このような差圧は、溝の寸法と流体粘度の差から生じる流

れの方向での不正確に釣り合った圧力勾配から生じる。界面がゼロでない差圧を安定して維持し得る寸法は2相間の界面張力、及び2相による溝壁材料の湿潤性により限定される。操作寸法及び隣接する固体表面を制御することにより、界面を安定化させることができる。

流体間の開放界面を安定化させるためには、2つの溝は、異なる湿潤特性を有し、界面領域の表面の輪郭を作り、特に界面を狭くして流体間接触の外側寸法を制限する異なる物質（例えばガラス、シリコン、スチール、ポリプロピレン、ナイロン）で構成されるか、又は素子の組合せを用いて構成される。溝間の開口部の又は開口部内の表面の型又は形状寸法の変化を整えることにより、界面を横切る差圧の限定可能な間隔に関して、その接触の移動が全く又は非常に少しきかないうに、流体間界面の固体表面との接触の移動を動かないようにするか又は制限し得る。これが実際にはどのように達成されるかを以下でさらに説明する。

界面の寸法は、溝の寸法、例えば並行して走る2つの溝間の壁を貫く開口部の狭いスリット（単数又は複数）又は列よりはるかに小さいと考えられる。しかしながら、本発明によれば、好ましくは存在する流体の量に関連してできるだけ大

きな界面が確実に利用できるようにして界面での迅速な相互作用を確保するためには、界面の幅が溝の対応する寸法と同じか、又は例えばその20分の1より小さくない。

界面領域の種々の形状が考えられる。例えば、好ましい一実施態様では、溝又は流路は、その長さの全部又は大部分に亘って延びる界面とかなり長さを並行して延びている。別の好ましい実施態様では、2つの溝は平行平面に配置され、各々ジグザグ形の又は込み入った形状を有する。2つの溝が互いに上に重なる点で、2液間の所

望の相互作用が多数の開口部で起こるように界面が形成される。

2つの溝の間に界面が形成されるかぎり、2つの溝は3次元で互いに対してもあらゆる方向に延びてよい。したがって、多溝系では、ある溝と異なる平面の溝との多数の連結を有する3次元グリッド様構造を想致し得る。

第1及び第2溝又は流路は、流体に対する通路を画定する特徴が支持体表面の溝又は他の構造、例えば歫、片持溝、あるいは導管又は管、延長くぼみ、側溝、溝穴又は仕切線として、あるいは他の支持体層により封入された支持体層又はガスケットを通るスリット又は道として、蝕刻され、圧縮され、切断されるか又は他の方法で形成される支持体の集成又は並置により形成され得る。支持体は層状形態を有するか、又は支持体ブロック内のそしておそらくはそれを通過する孔又は内腔に挿入又は充填されるか、あるいは支持体ブロックの表面に形成される棒又は他の角柱構造物を含むより複雑な立体構造物であって、孔又は内腔が所望により対応するねじ山を有するこのような孔又は内腔に適合する螺刻された棒を含む。このような棒、内腔及び螺刻された構造物は、流体間接触領域を有する溝のサブユニット成形品の集成を可能にするのに必要なこのような溝、歫又は他の構造を保有し得る。

溝の寸法は、微小工学処理法と矛盾しない；適切な方法としては、化学エッチング、電気めつき、レーザー機械加工及び光加工可能なガラスの使用が挙げられる。特定の方法を以下で説明する。

2つ以上の流体を処理加工するのが望ましい場合、種々の溝と一緒に連結する

ための種々の形状を想致し得る。ある配置では、2つの溝が第1及び第2流体間の一次相互作用のための界面領域を構成し、この領域の下流では、第3流体を第1又は第2流体と相互作用させるための第3溝を有するさらに別の界面が形成される。別の配

置では、所望の成分が第1流体から第2流体を経て第3流体にうまく輸送されるように、3つの溝が共通の領域で互いに界面を形成する。本発明によれば、大体においてあらゆる数の流体を処理することができる。

第2流体を保有する第2流路が反対側に流路を有して第1流路と別の界面を形成する配置では、第1流路の幅は前述の限界より広く、実際2倍の広さであるが、一方で、2つの向かい合う界面に対して2つの反対方向に第1流体中で拡散が起こるため、依然として適切な拡散が保たれる。したがって、概して、界面領域で、第1及び第2流体間の1つ以上の界面が存在するように第2流体流路が形成される場合には、第1流体流路は、第1流体流路がいずれも(i)最も近い界面から $10\sim500\mu m$ 、又は(ii)不等式 $I^2 < D' \cdot t \cdot x^{-1}$ (式中、記号は前記と同様である)で確定される距離(1)以上の界面領域にはないように存在する。

相対的に大量の液体を処理する必要がある場合又は以下で詳述するように他の複雑な処理環境で処理する必要がある場合、多数の界面領域を形成する多数の流体流路を用い得るが、各々の界面領域は、本明細書中では処理加工素子と呼ばれ、したがって多数の顕微鏡的量の流体を同時に処理加工し得る。本発明の多数の装置は、非常に廉価に製造可能であり、したがって、それは大量の液体を処理加工するための実際的解決法である。

したがって、本発明のさらに別の観点において、多数の処理加工素子を備えた第1及び第2不混和性流体を処理加工するための装置であって、各処理加工素子がそこを通るそれぞれ第1及び第2不混和性流体の流体流れを可能にするための第1及び第2流路を具備する装置を備え、流路の一部が互いに密着又は隣接して配置されて流体がそこに安定な開放界面を形成し得るような領域で互いに連通し

、少なくとも界面領域の第1流路が(i) $10\sim500\mu m$ の範囲内の、又は(ii)

不等式 $1^2 < D \cdot t \cdot x^{-1}$ (式中、記号は前記と同様である) で確定される距離

(1) 内の界面に法線方向に幅を有する装置が提供される。

本発明のさらに別の観点では、第1及び第2不混和性流体間の処理を実施する方法であって、以下の：

- 1) 互いに隣接又は密着して配置された部分を有し、且つ、流体が互いに接触し得る領域で互いに連通する第1及び第2流路を提供すること；
- 2) 少なくとも前記領域で両流体の流れが本質的に層状であり、且つ、安定な開放界面が流体間に形成されるように、前記第1及び第2流路のそれぞれに第1及び第2不混和性流体を流すこと；
- 3) 2つの流体間の前記界面で所望の存在物を有意に移動させること；
- 4) 流体を混合させずにそれぞれの流路の界面領域から流体を流出させること；そして
- 5) 前記界面領域が単一の処理工程素子を形成する場合には、各処理工程素子内の流体の同時処理加工を可能にする多数のこのような処理工程素子を提供すること；

を含む方法が提供される。

図面の簡単な説明

本発明の好ましい実施態様を、図面を参照しながら説明する：

図1a及び1bは、第一の実施態様の平面図であって、図1bは図1aの線A-A及びB-Bでの溝の横断面を示す。

図2a及び2bは、本発明の第二の実施態様の平面図であって、図2bは図2aの線A-A及びB-Bでの溝の横断面を示す。

図3a及び3bは、本発明の第三の実施態様の平面図であって、図3bは図3aの線A-A及びB-Bでの溝の横断面を示す。

図4~6は、溝間の所望の位置に液体界面の位置を固定するための配置の略図である。

図7は、上記の実施態様を形成するための方法を説明する図である。

図8a及び8bは、本発明の第四の実施態様の透視及び断面図である。

図9 a 及び 9 b は、本発明の第五の実施態様の平面図であって、図9 b は図9 a の線A-A 及びB-B での溝の横断面を示す。

図10 は、電極構造物を組み込んだ本発明の第六の実施態様の略図である。

図11 a ~ 11 f は、多数の溝及び界面領域を含む実施態様の略図である。

図12 は、多数の界面領域を有する 2 つの溝を含む本発明のさらに別の実施態様を示す。

図13 は、一連の平行立体構造の多数の処理加工素子を用いた本発明のさらに別の実施態様の略図であって、図13 a は別々の支持体の流体流路を示し、図13 b は処理加工素子を形成するために重ねられた支持体及び流路を示す。

図14 は、平行流配置で多数の処理加工素子を用いる本発明の最後の実施態様の分解透視図である。

好ましい実施態様の説明

図1に示した本発明の第一の好ましい実施態様を参照すると、シリコン支持体13 に形成された第1溝11 及び第2溝12 が示されている。溝の上面はシリコン支持体13 に接着されたガラス板14

で密閉されている。図に示すように、溝は流入領域15 に集中してカーブし、長さ約500ミクロンの接触領域16 で互いに平行に隣接して延びて、流出領域17 で逸れてカーブしている。接触領域16において、横断面は、図1 b に示すように、幅200ミクロン、高さ100ミクロンの単純な長方形であり、一方集中及び散開領域の溝の横断面が幅100ミクロン、高さ100ミクロンの正方形であるように、溝間の仕切り壁を除去する。

使用に際しては、第1溝11 を通る層流条件下で流れる第1液を、第2溝中の層流条件下で流れる不混和性流体と接触させる。接触領域16 の2液間に形成される安定な開放界面は、それにより拡散過程が起こる手段を提供し、例えば一方の液から他方の液への溶質の物質移動（溶媒抽出）が起こる。その条件は、一方の液体中に存在する少なくとも1%の溶質が界面を通じて他方の液へ拡散するというものである。液体はその後、流出領域17 で、混合することなく界面領域から流れ出る。

図2を参照すると、第二の実施態様は図1と同様であり、同様の部分が同一参考番号で示されている。しかしながら、溝の横断面は、幅100ミクロン、深さ50ミクロンのほぼ半円のくぼみに変更されている。接触領域1.6は、図2 bに示す横断面を有し、中心凹1.8を有するよう変更されている。横断面はカーブして、支持体表面から50ミクロンの深さで、接触壁から50ミクロンの2つの底1.9と、中心に底から25ミクロンの高さの凹1.8を有する。横断面のこの変形により、以下で詳述するように、2つの流体間の安定接触のための条件が第1及び第2流体の物理的混合を伴わずに確実に用意されるように、界面安定性が接触領域で改良される。

図1及び図2の実施態様では、界面の長さは500ミクロンと示されている。しかしながら、2液間の適切な接触時間を生じさせるた

めには、これより大きく、1mmか又は2cmまでの長さにすることができる。

不混和性流体を接触させ、次いで分離させる場合、流体及び界面の形状寸法が束縛される必要がある。層の厚みはcmのオーダーを有して十分に大きく、そして流体相の形状寸法及び界面位置は一般に重力により支配され、低密度流体はより密度の高い流体の上に重なり、界面の平面は実質的に重力場の方向に対して直角である、ということはありふれた観察である。液体／気体系を含めた不混和性流体に関して便宜上受け入れ易い密度差及び界面張力の範囲に関しては、表面張力作用は数ミリメートル以下の寸法に対しては優勢になる傾向があり、そして10~500ミクロン範囲に層厚を実質的に制御することは本発明を適用するにあたって重要である。したがって、迅速拡散輸送に適した層寸法に関しては、流体間界面位置は界面張力及び接触角度といった表面張力作用により大々的に制御される。所望の界面位置を達成するためにこれらの作用を用いるには、選択された構造及び寸法を、そして選択された接触角度範囲を有する物質を用いる必要がある。界面位置の固定は、くびれを備えることにより、そして接触角度を変化させることにより、及びこれらの因子の組合せによって達成し得る。

流体が流動するためには、流路を通して圧力勾配を提供することが必要であり、なんらかの差圧が界面を通して生じることは不可避である。一方の流体に対する

るもう一方の流体による過度の閉塞を伴わずに、そして一方の流体の他方の流体内での小滴又は気泡生成を伴わずに、それらの使用中に生じるように、界面湾曲を発現させてこのような差圧を維持することが望ましい。これは、下記のようなくびれ及び／又は材料表面変化によって達成し得る。

用いられる2つの溶剤はしばしば水及び炭化水素溶剤であるので

、疎水性表面を有する物質から一方の溝を、親水性表面を有する物質から他方を形成することにより、又は一方の溝を疎水性層で、他方を親水性層でコーティングすることにより、界面領域を安定化し得る。その場合、水の流れは自然に接触領域の親水性側に、炭化水素溶剤の流れは疎水性側に画定される傾向がある。

図3を参照すると、第三の実施態様は多くの点で第一及び第二実施態様と同様であり、同様の部分は同一参考番号で示されている。大きな差は、第1溝31がより深くシリコン支持体33に形成されており、その内面に疎水性物質のコーティング32で被覆されていることである。第2溝33は上部ガラス支持体34に形成され、その表面は当然親水性である。図3bに認められるように、接触領域16では、界面領域がその間で水平に延びるように、第1及び第2溝は一方が他方の上に重なっている。各溝は50ミクロン四方の単純矩形として示されているが、しかし別の例では半球である。

図3の界面領域の条件を、図4により正確に示すが、これは紙面に垂直に流れ、上記のように重力の影響を無視し得ない十分に短い距離dで分けられる平行壁46、48により画定された2つの液42、44の界面40を通る横断面を示す。この場合、壁材又は壁表面47、49は所望の界面位置を境にして異なる。図4では、2つの液はそれぞれ圧力 P_1 及び P_2 を有し、界面40は曲率半径rを有する。圧力の差 $\Delta P = (P_1 - P_2)$ は曲率半径に逆比例し、流れの方向に延びる2液間の界面に対しては、以下のように表される：

$$\Delta P = \gamma / r \quad (\text{式中、}\gamma\text{は2液に関する界面張力である})$$

さらに、離隔dで壁間に画定された2つの流体間の静止界面について流体界面と壁材との間の平衡接觸角度がθである場合の条件を以下に示す：

$$\Delta P = \gamma d / (2 \cos \theta)$$

したがって、差圧 ΔP の単一値のみが存在し、このため、壁離隔 d 及び接触角度 θ が単一値に固定される場合には、界面は不動である。このような条件下では、任意の所望の位置に界面位置を固定するのは非常に難しい。実際には、現実系に関する接觸角度の値のヒステリシスは界面を一般的に最も望ましいという訳ではないが正しい位置に固定するようになる傾向がある。

図4では、表面47及び49を有する2つの流体に関する平衡接觸角度は、それぞれ θ_A 及び θ_B で示されている。物質の表面間46(図4に示される界面位置の左)では、差圧が $\Delta P_A = \gamma d / (2 \cos \theta_A)$ でなければ、界面は移動する。同様に物質の表面間49では、 $\Delta P_B = \gamma d / (2 \cos \theta_B)$ 以外は、界面はすべての差圧に関して移動性しうる。しかしながら、物質間接合部47及び49では、接觸角度に変化があり、したがって接觸角度及び差圧の間隔が存在し、このため固体表面接觸位置に対して界面は変化しない。この固定条件は、表面型 θ の接合部での接觸角度が有限差圧間隔に相当する $\theta_A \sim \theta_B$ である間は適合しない。したがって、固定化界面は、界面を横切る差圧 $P_1 - P_2$ が以下の式を満たす間は存在する：

$$\Delta P_A < (P_1 - P_2) < \Delta P_B$$

すべての壁が同一物質であると解釈され、平衡接觸角度 θ は変化せずそれぞれの溝52、50中の流体54、56の差圧 ΔP_A 及び ΔP_B は、広及び狭部における不動性に関する単一値を示す場合の異なる幅 d_A 、 d_B を有する2つの溝50、52の間の接合部を通る横断面を示す同様に図5を参照すると、狭部への入口57では、固定のための圧力間隔は次式で示される：

$$\Delta P_A = \gamma d_A / (2 \cos \theta) < (P_1 - P_2) < \Delta P_B = \gamma d_B / (2 \cos \theta)$$

図2に示したように形成され、そして図6のように拡大して示されている構造に関しては、前記のように界面を狭くすることにより安定性が達成されるが、しかし界面を狭くすることは図5の場合のように急に狭くするわけではないので、界面の多少の移動が認められ、安定境界内の圧力変動を伴う。

図7を参照すると、図2及び6に示した溝構造の形成方法が示されている。初期段階Aでは、1mm厚のシリコン支持体70が提供される。工程Bでは、シリコンオキシニトリドフィルム72が支持体の両側を覆う。工程Cでは、固定工程により支持体の上面に光硬化性樹脂層74が蒸着される。工程Dでは、幅10ミクロンで50ミクロン間隔の隙間76で示されるような基本的な溝立体構造を提供するために、陽性レジストによるフォトリソグラフ処理加工によって光硬化性樹脂層74上に所望のパターンが形成される。

工程Eでは、溝位置を明示するためにプラズマエッティングにより、シリコンオキシニトリドフィルム72を77でと同様にエッティングし、工程Fでは光硬化性樹脂層74を除去して、Fの構造の平面図である図7aに示すように、シリコンオキシニトリドフィルムに幅10ミクロンで50ミクロン間隔の蝕刻溝を残した。

工程Gに示すように、等方性エッティング法はギャップ76中のシリコーンを蝕刻して、シリコーン支持体に幅広のくぼみを作り（点線で示す）、最後にこれを中心点78で合するようにした。工程Hに示すように中心合流点78が支持体上面下の予定距離に達するまで、エッティング工程を継続した。次に、この構造を図2及び図6に示す。

工程Iでは、ガラスのカバープレート80を、熱、圧力及び高電

圧を伴う公知の方法により支持体の表面に陽極的に接着させる。

図8を参照すると、本発明のさらに別の実施態様が示される。本実施態様は、その中に管状内腔101を有し、嵌め合い管状ガラス棒102を挿入される金属ブロック100を包含する。内腔101はその周囲に軸方向に延び、第1流体流路を形成するくぼみ103を有する。棒102は同様の形状のくぼみ104をその周囲に有し、これは第2流体流路を形成する。図8bに示すように、棒を内腔に挿入すると、2つの流体流路は共通の界面領域105を画定する。図のように、界面領域が流体流路の幅の半分にだけ延びるように、2つの流路を互いに食い違わせる。溝のどちらかの幅より狭い界面領域105を形成する方法は、それが界面領域での絞りを工学処理するというより単に流体流路の幾何学的形状に依っているため、界面領域を形成する簡単な方法である。

図8に示した実施態様に対しては種々の修正が可能である。例えば、くぼみ103、104は、棒及び内腔の表面周囲に延びるねじ山として形成し得る。あるいは、多数の軸方向に延びるくぼみを棒及び内腔中に形成し得るし、棒及び内腔は図8に示す円形以外の横断面を取り得る。

図9a及び9bに示した実施態様を参照すると、第1流体流路がシリコン支持体112に形成され、その内面に疎水性物質のコーティング113を有する。上部ガラス支持体114は、半円形くぼみとしてその中に形成される第2及び第3流体流動溝115、116を有する。図9aに示すように、流路111は真っ直ぐで、一方、第2及び第3流路115、116は流入領域117で湾曲し、流出領域118で逸れる。中央接触領域119では、3つの流路はすべて互いに平行で、図9bに示すように、第2及び第3流路115、116は第1流路113と部分的に重なり、第1及び第2界面領域

120及び121を限定する。第2及び第3流路115、116は、その表面に疎水性コーティング123を有するランド領域122で分離される。

したがって、この実施態様は、2つの界面領域120、121の3つの流体間の拡散輸送のために不混和性流体を互いに接触させる方法を提供する。中央接触領域の流路111からの流路115、116の食い違い配置は、界面領域120、121の幅を幾何学的に決定するための簡単な方法を提供する。

本発明の方法及び装置の特定の例を以下に示す：

実施例

装置の形状寸法：ガラス層をシリコンシートの表面に接着させた。仕上面の蝕刻流体流溝は部分的に重複して界面領域を生じた。ガラスを蝕刻し、 $88\mu\text{m}$ ×深さ $37\mu\text{m}$ とした。シリコン溝は幅 $60\mu\text{m}$ 、深さ $53\mu\text{m}$ であった。ガラス及びシリコンを集成して、溝間の重なりを $28\mu\text{m}$ とし、界面の全長を 1cm とした（実際に4つのセクションに分かれる）。

化学的性質：トリプチルホスフェート5%（重量）及びキシレン95%の混合物中にFe(III)を含有する有機相を接触器の一方の溝に流し、3M塩酸を第2溝に流した。入口で静水圧を用いて流速を制御した。有機相の流圧は約1cc/日

テ水性相はこの値の約半分であった。2相の混合は観察されなかった。ガラス溝から流出する水性相の分析は、0.035MのFe (III) 濃度を示した。TBP／キシレン／Fe (III) 相の比較のために、2:1の比で3M HClを用いて振盪した。その結果生じた乳濁液の分離後の水性相の分析は、0.16MのFe (II) 濃度を示した。したがって、接触器中の工程の効率は約22%であった。

図10を参照すると、本発明のさらに別の実施態様が示される（図1と同様の部分は同一参考番号で示す）。溝11、12はそれぞれ投入口130、131及び出口132、133を有する。隣接する各口には、リード線134により端子パッド136に連結される3つの電極a、b、cを配置した。電極、リード線及び端子パッドは、支持体13の表面上に金属フィルムを蒸着して形成し、電極a、bは白金を蒸着して、電極cはイリジウムを蒸着して形成した。この形状寸法では、溶液の導電性は、白金電極a、bの対により確定し、一方イリジウム電極cを用いて参考電極（示されていない）に対する電位を測定することにより局所pHを確定した。白金電極a、bを用いて接触器のもう一つのアームのものに対する、又は参考電極（示されていない）に対する溶液の電位を測定することができる。同一電極を用いて、特定の種を酸化又は還元するのに必要な電荷を測定する電流測定を実施することができる。

本発明の構造物は、電気的導電性、半導電性、又はイオン伝導性電極構造物、あるいは流体流れと接触する接続部を備えている。これらは、検出又はモニタリングのための、あるいは接触器の機能、例えば分配係数に影響を及ぼす酸化還元条件を制御する作用又は調整パラメーター用である。電極及び／又は導電性接続部を伴う種々の工程を以下に示す。

電極又は導電接続は、流路を形成する溝壁又は支持体を形成し得るか、あるいは流路を形成する支持体物質の一部であるか、あるいはこのような支持体物質上の連続コーティングである非導電物質の上又はそれを通したワイヤ、フィルム又は溝として形成され、画定される。電極又は導電性接続部が形成され、流体間接触が確立された開口部から離れた流路と接触する。その例としては、接触器に液体を導入したり又は除去するために用いられるようなマニホールド

の入口を介した流体との接続、並びにこのような入口と界面領域間の溝内での接続が挙げられる。同様の電極又は導電性接続部は、流体間界面に隣接した又は接触した流路の領域で形成されるか又はそこに位置する。

電極又は電極群、あるいは流路との導電性接続部は、電極間の溶液の導電性を含む種々の手段による流れの存在又は流速の検出、電位の変化、並びに酸化又は還元されたイオン、気泡又は生体細胞を含む粒子のような流れ内に存在する種のモニタリング及び／又はパルス発生に用いることができる。

電極又は電極群、あるいは流路との導電性接続部は、溶液導電率、酸化還元電位、pH及びその他の濃度関連電位を測定することにより、あるいは電位走査工程を用いて又は用いずに電流測定を実施することにより、流れ内の種々の種の存在を検知し、モニタリングするために用いることができる。流れ内の粒子を含めた異質物の数及び寸法は、時間に伴う電極間の導電性の変化を測定することにより得られる。

電極又は電極群、あるいは流路との導電性接続部は、電気浸透及び関連する界面動電作用により微細流溝の流速を落とすために用いることができる。界面領域への又はそこからのイオンの流出又はパルス発生は、このような電極又は接続を用いた電気泳動により生成又は修飾し得る。

流路内の流体と接触する電極を用いて、種の電気的還元又は電気的酸化により、例えば $F e^{2+}$ 及び $F e^{3+}$ 間の変換により、流れ内の酸化還元条件を変えるのに用い、それによって、流体中の種の濃度及び不混和性流体間の分配を変えることができる。電極及び導電性接続部を用いて界面領域まで及び界面領域を横切る電場を印加し、それにより所定の存在物、特にイオン種の界面への及び界面からの輸送、並びに界面を通しての輸送を助けるか又は妨げることができる。

いくつかの種の吸収、界面張力及び固体表面との接触角度を含めた流体及び固体の界面特性は、適用される場により又は酸化還元条件によって変更することができる。したがって、電極又は導電性接続部を用いて、界面張力及び接触角パラメーターを修正し、したがって界面の固定及び位置を変え、そして流動パターンを変更することができる。最後に、この作用を用いてある流体を別の流体に正常

に占められた溝を通過させて、流体切替え及び分節化流の生成のための手段を提供する。

さらに導電性流体との電気的接続は、電流を通過させて、溶液及び溶液と接触する表面の温度依存性パラメーターを修飾する局所加熱を提供するあるいは、流路の構造内の又はそれと接触するが流体とは電気的に接触しない抵抗のある電気接続具を用いて、装置の部分を加熱することができる。同様に、装置本体内の又はそれに接触する適切な半導体接合部への接続の封入を用いて、装置の各部分を加熱又は冷却することができる。

磁場を装置内に印加すると、装置内に組み込まれた界磁ガイドが、磁性微小粒子に関連した種を含めた磁性物質又は種の輸送を変更し得る。磁気流体力学現象を用いて流れを誘導し又は変更させることができる。

ガイド又は光学纖維による光学的連結具は、界面領域又は他の場所に隣接する流体流との交差を引き起こし得る。これらは、種の同定、検知及びモニタリングに、並びに光励起及び光化学反応による種の発生のために用いることができる。界面領域に密着した光化学的及び／又は電気化学的手段による短命種の発生により、その後の安定化又は反応のために第2流体へそれらは迅速に移動され得る。

図11a及び11bを参照すると、2つの外側溝138が第1流体を保有し、第3中間溝140が第2不混和性流体を保有する本発明の実施態様が示される。中央界面領域142（図11aに部分的に示される）では、第3溝140は2つの界面144の2つの反対側の溝の各々で第1及び第3溝138と連通する。界面領域の第3溝140の幅は1000マイクロメートルであり、一方、溝138の幅は500マイクロメートルである。溝140はいずれも界面144から500マイクロメートル以上離れていない。

図11c及び11dは、多数の支持体層152を具備している長方形ブロック150で構成される3次元格子構造から成る実施態様の上面図及び側面図である。第1流路154は鉛直方向に下方に向かって延びており、各流路はその長さに沿って多数の界面領域156を有する。第2流路158は水平に延びて、各第2流路はその長さに沿って多数の界面領域156を有する。その結果、相対的に大

量の流体を処理するための非常にコンパクトな系である。

図11e及び11fは、別の3次元格子様構造を示す。図11eは間隔を置いた平行な2枚のプレート160、162の透視図で、各々そこに形成された開口の列164、166を有し、反対側のプレートの開口は互いに一直線に並んでいる。図11fはプレートの断片的断面図であって、プレートが等高表面を有することを示す。使用に際して、第1不混和性流体はプレート160、162の上及び下の層172、174で流れ、第2不混和性液はプレート160、162間の層176で流れる。整合している開口164、166のために、第1液を、適切な条件下で、整合している開口を通して第1層172から層174へ連続的に流して、安定な気泡状構造178を形成する。気泡178の外表面は第2液を有する管状界面180を形成して、2液間の拡散輸送の工程を可能にする。寸法に関する

しては、開口164、166の直径は100マイクロメートル以下で、プレート160、162間の間隔は液体の性質により決定される寸法であって、主たる目的は、界面180を横切る有意量の拡散移動をさせながら、気泡178の安定性を保持することである。管状界面180は、多数の素子界面域を効率よく作ると見なされ、界面領域の第1流路はいずれも界面から500マイクロメートルより遠くにはない。

図11は、大量の液体の処理加工を可能にするために非常に多数の界面領域を有するコンパクトな系を提供するための装置を開示するが、各界面領域が一直線で単一処理加工素子を形成する列に用いられるように、図1を参照しながら説明したような実施態様に適用するのが望ましい。このような列に関しては2つの基本的な立体構造がある：

1. 平行系

この配置が用いられるのは主に、物質の有意の流出を要する情況においてである。単一処理加工素子の収量は1時間当たりmgのオーダーか又はわずかに μ gのオーダーであると思われるため、分析に用いる以外のほとんど全ての情況で多数の平行した装置が必要である。本系が化学物質の収量を増大すると同時に、平行系がさらに、多数の情況で望ましいことであるが、冗長度の可能性を切り開く。

2. 連続系

2つの主な用途がある：

i) 系を安定化させる方法

工程素子中の2つの流体間の接触長は、流体の流動特性、種々の種の輸送特性及び物質移動反応の動力学により決定される。いくつかの情況では、單一処理加工素子で必要な長さを達成できず、そこで界面を多数の部分に分割する必要がある。いくつかの情況では、

これは多数の接触器を連続して連結することにより達成し得る。さらにいくつかの適用においては、液体の流動特性を順次変化させる高密度及び粘度の不混和性相中で変化を引き起こす有意量の化学物質種が移動される。したがって、流体特性がその間に中等度の変化しか受けない多数の段階に本工程を分割するのが望ましい。各段階に用いられる微小接触器は、したがって、限定範囲の流体特性を最適化し得る。

i i) 逐次処理加工

いくつかの情況では、多数の逐次工程を要する。例えば、いわゆる水性相から有機相への一次抽出後、移動種のいくつかを第2水性相に抽出し戻すのが望ましい。これは、一連の接触器を用いて達成することができる。別の例に関しては、水性相から有機相への不完全な一次抽出後、新しい有機相を用いて水性相から再び抽出するのが望ましく、できるならばこの工程を数回反復して、水性相からの抽出を完了させる。これは一連の接触器を用いて達成することができる。他の情況としては、不混和性流体界面を通した一連の溶液からの一連の試薬を投与して、例えば酸性度を変え、化学滴定工程に指示薬を付加する場合が挙げられる。

上記の2(i)に示した連続系の例を図12に図示したが、この場合、第1溝190は曲がりくねった形状を有し、多数の交差点1941、1942……194nで真っ直ぐな第2溝192と交差する。このような構造は1つの支持体の上面に第1溝30を有し、支持体の下面に第2溝192を有して、2つの支持体を重ね合わせて形成される。したがって、2つの溝の間の界面は、一連の小界面領域として形成され、各々が溝の幅(50マイクロメートル)と等しい矩形断面

を有する。各界面領域は処理加工素子と見なされる。このような構造は、低粘度流体がそれより粘度の高い流体と接触さ

れる場合に用いられる。高粘度流体は第2溝192を通って進み、一方曲がりくねった溝を流れる低粘度流体は各界面領域で正しい差圧を保持し得る。したがって、各溝の長さに沿って圧力降下が認められ、圧力降下は既定長の溝に関しては高粘度流体においてより大きい。したがって、低粘度流体に関しては各界面点間に長い溝を配置することにより、装置全体の安定性が保持されるように差圧を適合させることができる。

図13に示した実施態様を参照すると、これは逐次処理加工について上記の2(i i)に記載した一例であり、この場合、ある液相を二次相のいくつかの流れに接触させる。溝202、204は、図13.aに示すような2つのシリコン支持体206、208のそれぞれの表面の溝として形成される。図13.bに示すように、支持体を別の支持体の上に載せて溝202、204が重なり合って210のような界面領域を形成し、各界面領域は処理加工素子を構成する。したがって、各溝202、204は所望の拡散性移動工程を実施して他の溝204又は202中の流体の流れを分離し得る一連の連結した処理加工素子の列を含有することができる。

この配置の主な利点は、2相間を大きな面積で接触させることができることである。この場合、2つの相の各々の組成は、その相を含む全ての溝全体で同一であると思われる。しかしながら、いくつかの情況では、ある相の特性を変えるために、例えば抽出し戻すことが有利である。例えば第一鉄から第二鉄を分離する場合には、第二鉄を水性相から有機相に移した後、第二鉄を戻し抽出により第2水性相中に回収して酸性度又は酸性状態を変化させる。これは、別々の溝中の流体の適切な選択により成し得る。

図14に示した実施態様を参照すると、これは上記の1で説明した平行系の一例であって、多数の接触器又は処理加工素子220を

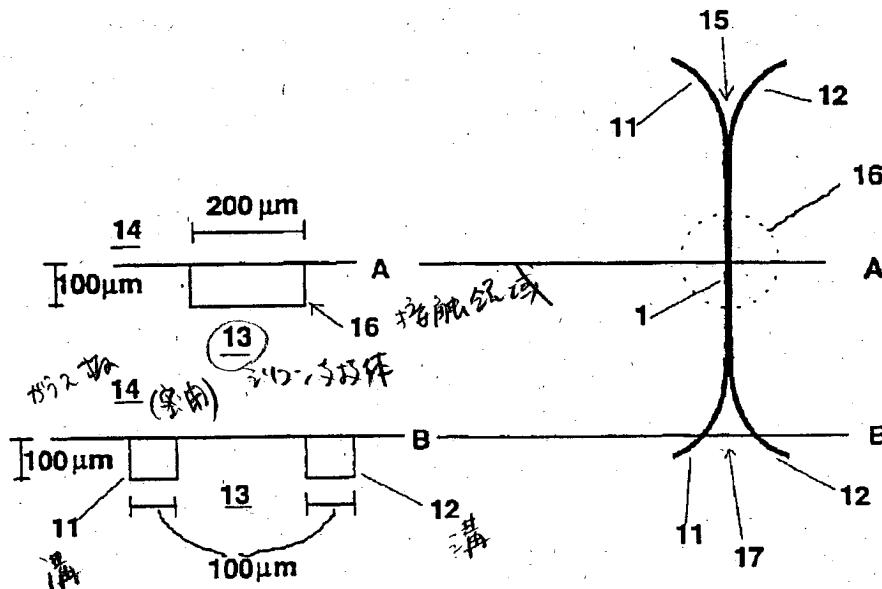
一緒に平行に連結する有効な手段を提供する。それらが同一の圧力降下を経験し

したがって同一の流動条件を有するような方法で処理加工素子と一緒に連結するのが望ましい。さらに、粒状物質を含有する流体を用いる場合は、狭い溝が閉塞されるという多少の危険性があり、そこでいかなる閉塞でも最小数の処理加工素子しか影響を受けないような系を設計することが重要である。処理加工素子 220 を、金属、ガラス、セラミック、ポリマー又は生じる化学工程に適合するいくつかの他の物質から作られる多数の平面 222 上に組み立てる。各処理加工素子 220 は、入口 228、230 及び出口 232、234 を有する第 1 及び第 2 流体流路 224、226 を備えている。中央界面領域 236 では、流路 224、226 は 2 液間に安定な開放界面が形成される界面領域で互いに接触する。立体配置は図 1 に示したものと同様である。接触器の入口 228、230 及び出口 232、234 は、プレートを右方向に通り抜ける開口部として形成されている。使用に際しては、接触器を備えている平面とほぼ直角に配向した広口導管 240 を形成するように、プレートを開口部と一緒に（それらは透視できるよう間隔を開けて示してある）直列に積み重ねる。次いで、締めつけ、接着剤による接着、融合又は流体を確実に密封するための他のあらゆる適切な方法により、平面と一緒に保持する。図面には 1 平面上に 1 つの処理加工素子だけしか示していないが、プレートの開口部の数を増大することにより、又は 1 つ以上の処理加工素子を各開口部に連結することにより、多数のこのような処理加工素子を各プレート上に組み立てることができるものとする。

【図1】

Figure 1b

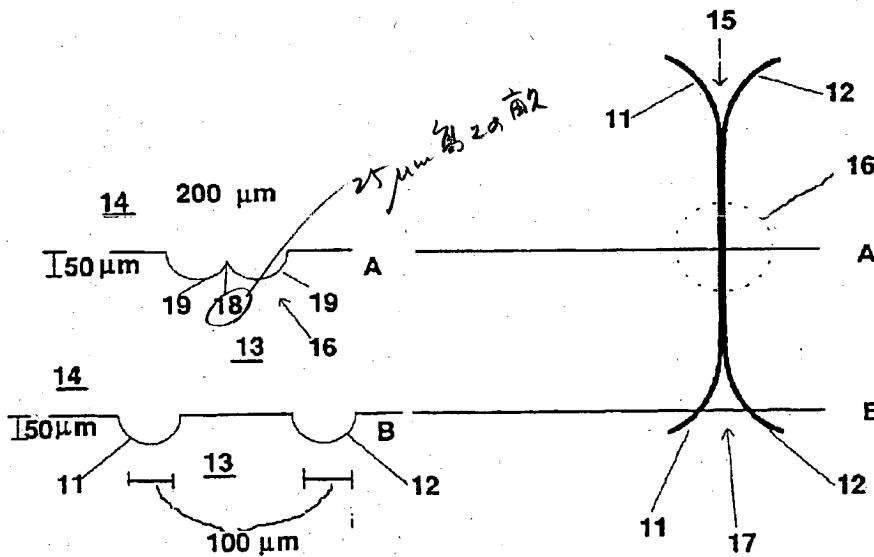
Figure 1a



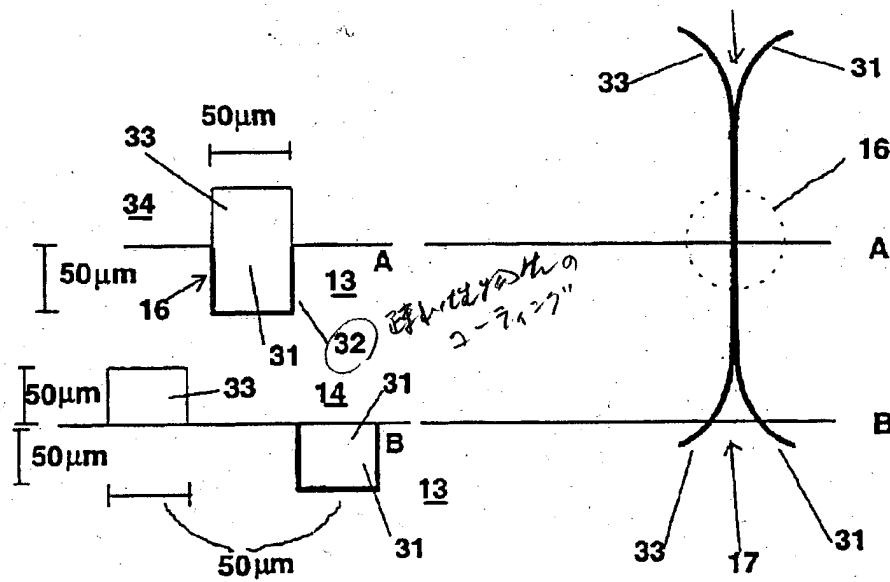
【図2】

Figure 2b

Figure 2a



【図3】



【図4】

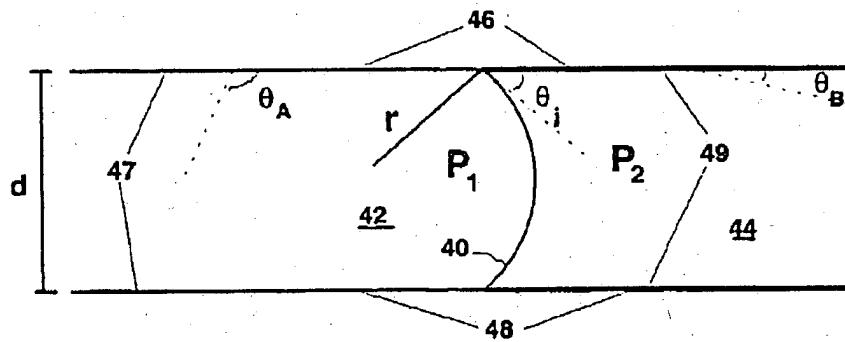


Figure 4

【図5】

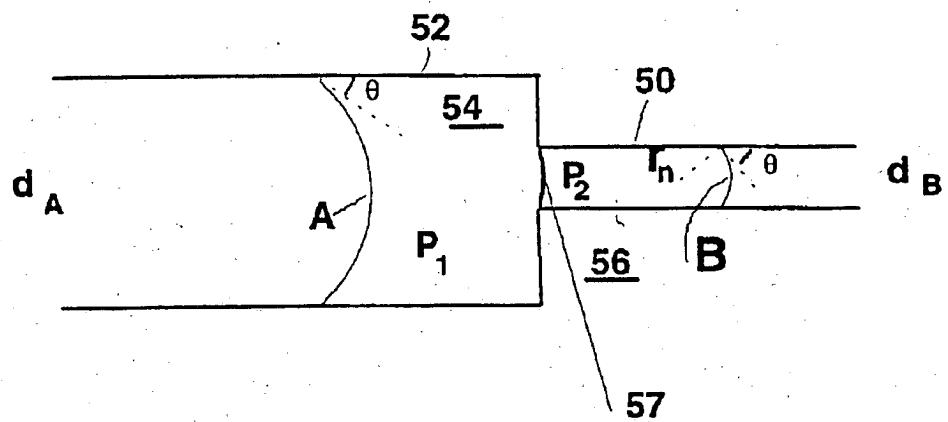


Figure 5

【図6】

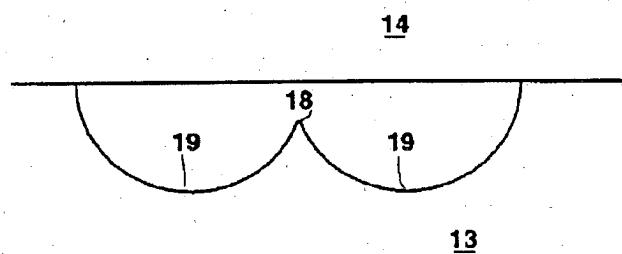


Figure 6

【図7】

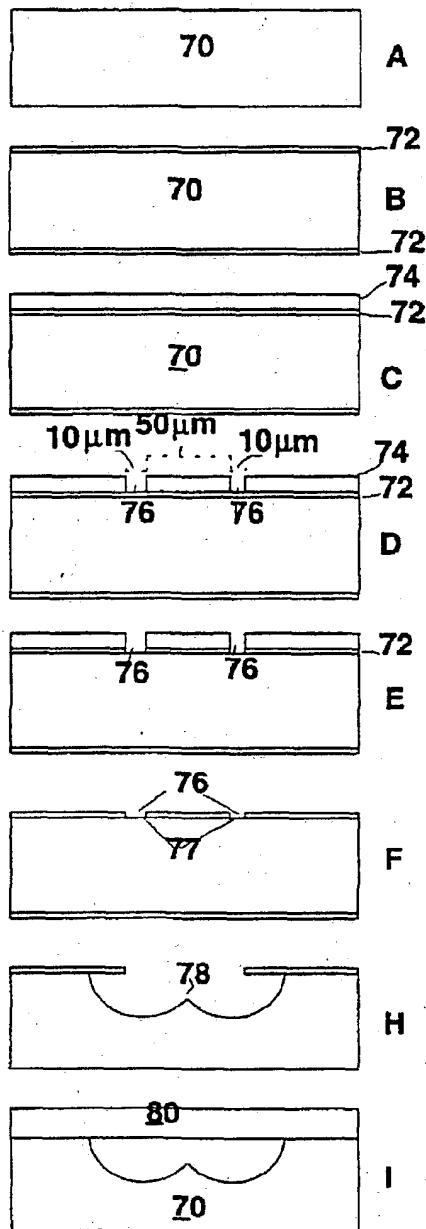
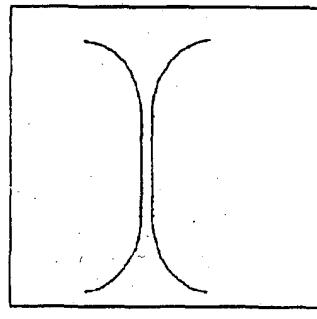


Figure 7

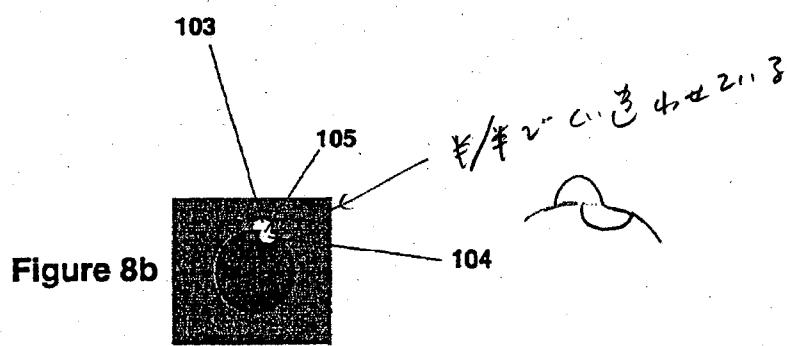
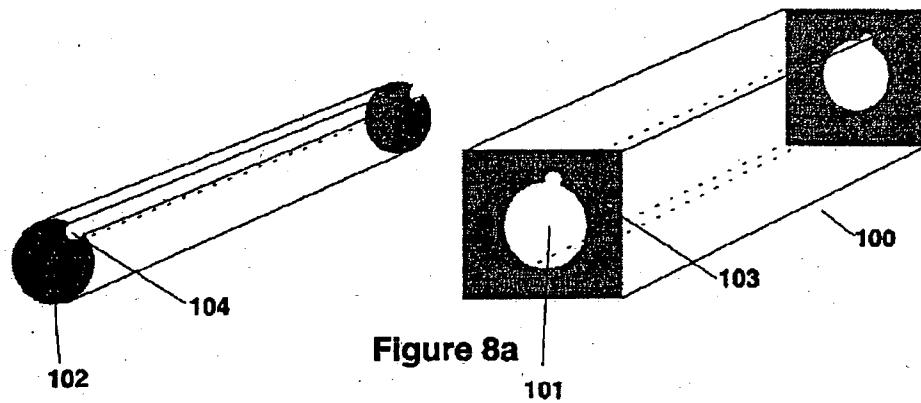
Figure 7a



G

I

【図8】



【図9】

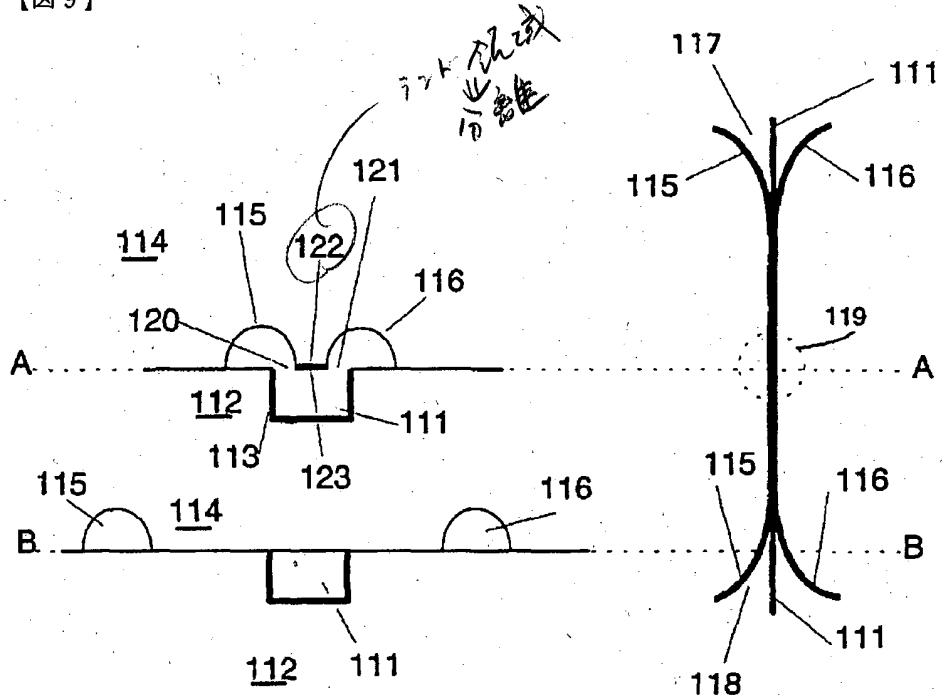


Figure 9b

Figure 9a

Figure 9

【図10】

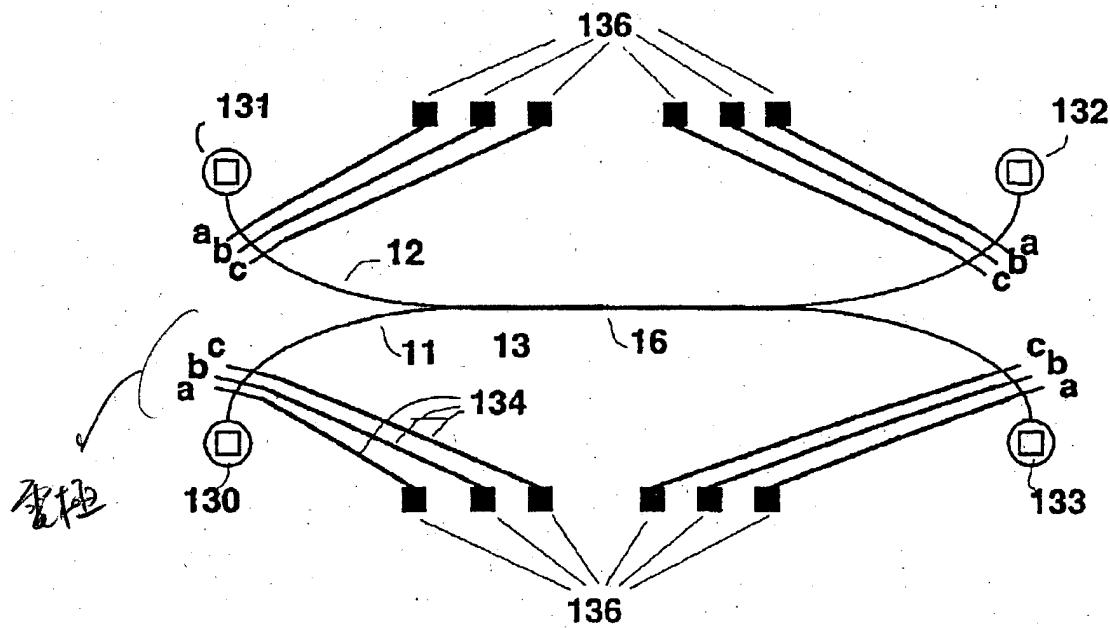


Figure 10

(41)

特表平10-507962

【図11】

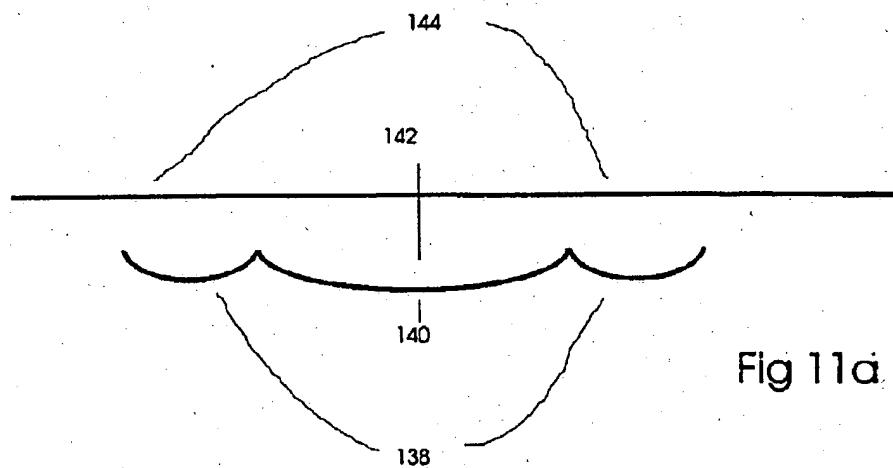


Fig 11a

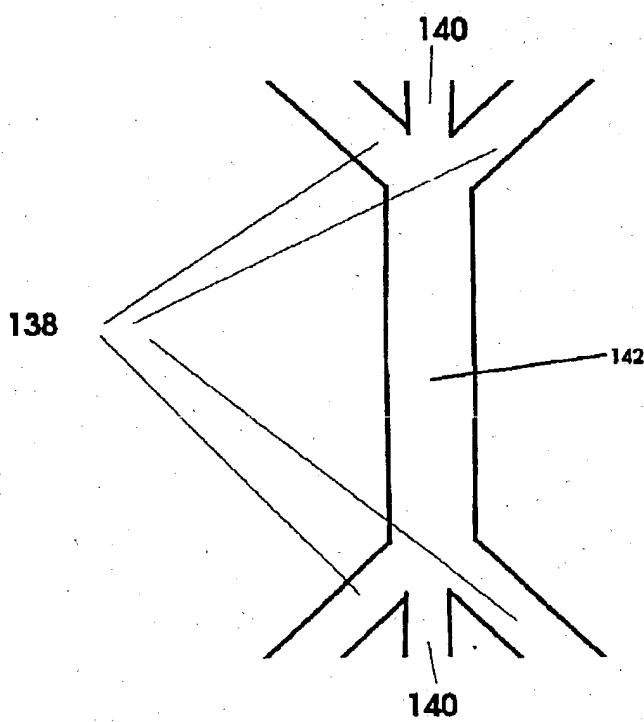


Fig 11b

【図11】

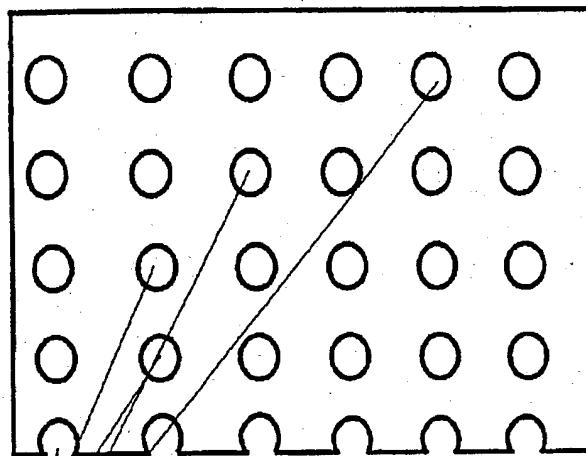


Figure 11c

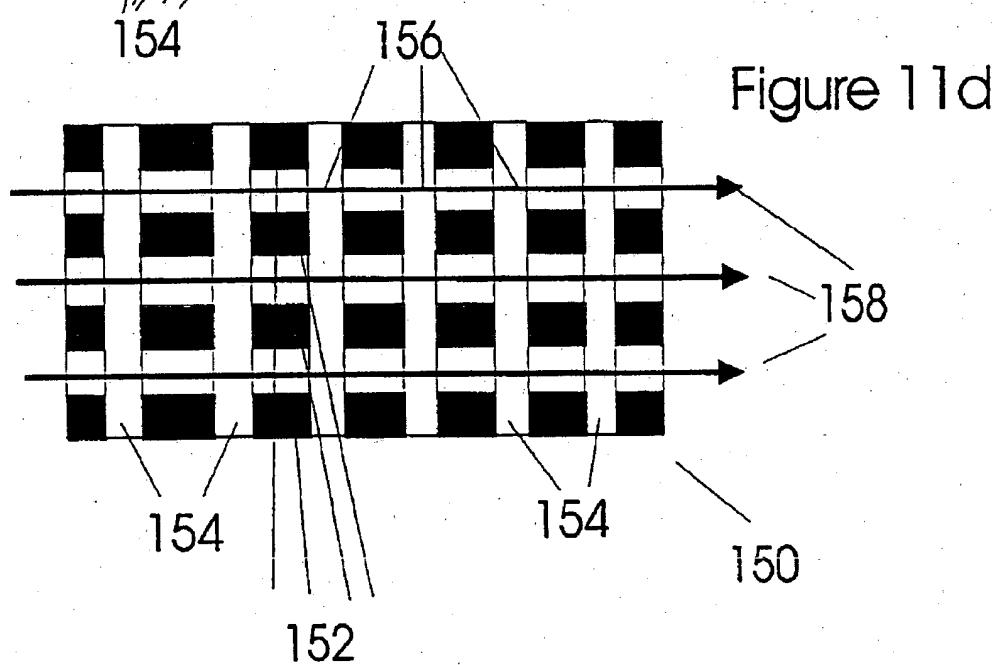


Figure 11

【図11】

Figure 11e

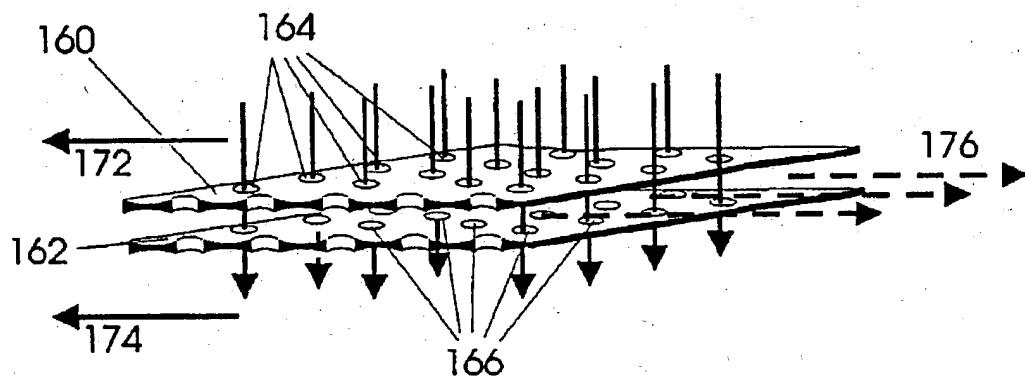


Figure 11f

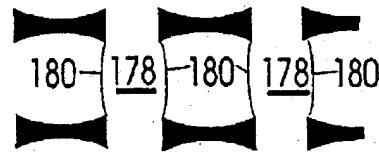
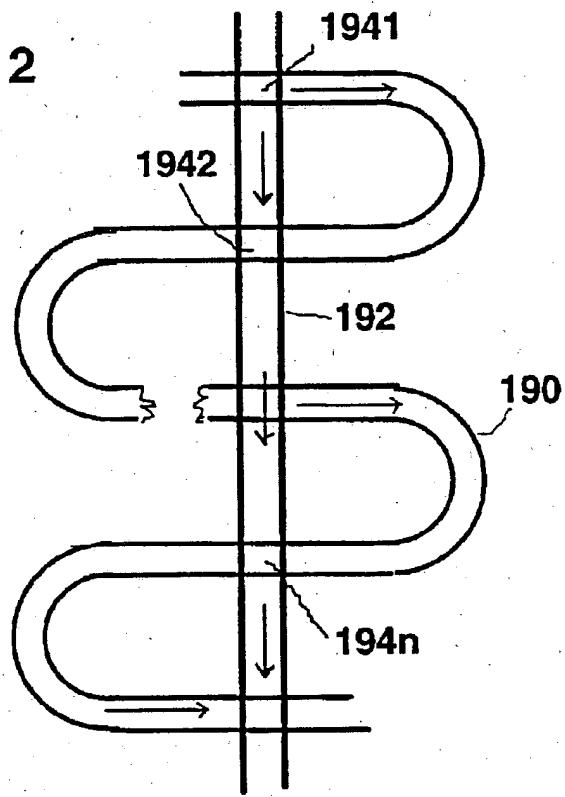


Figure 11

【図12】

Figure 12



【図13】

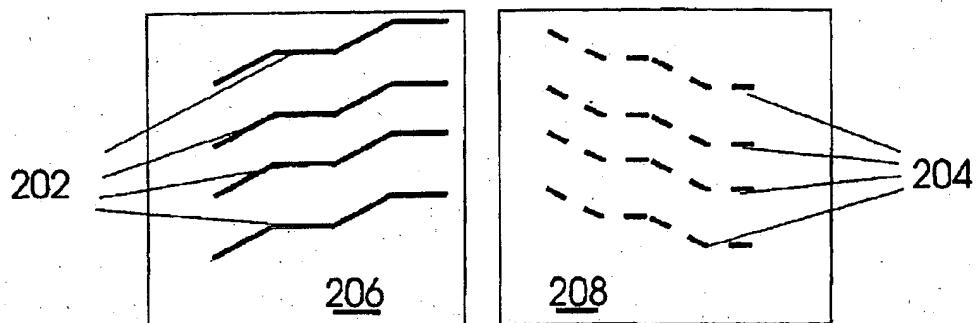


Figure 13a

Figure 13b

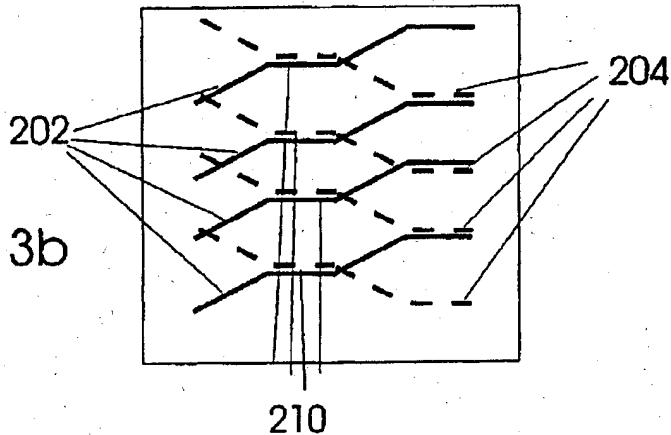


Figure 13

【図14】

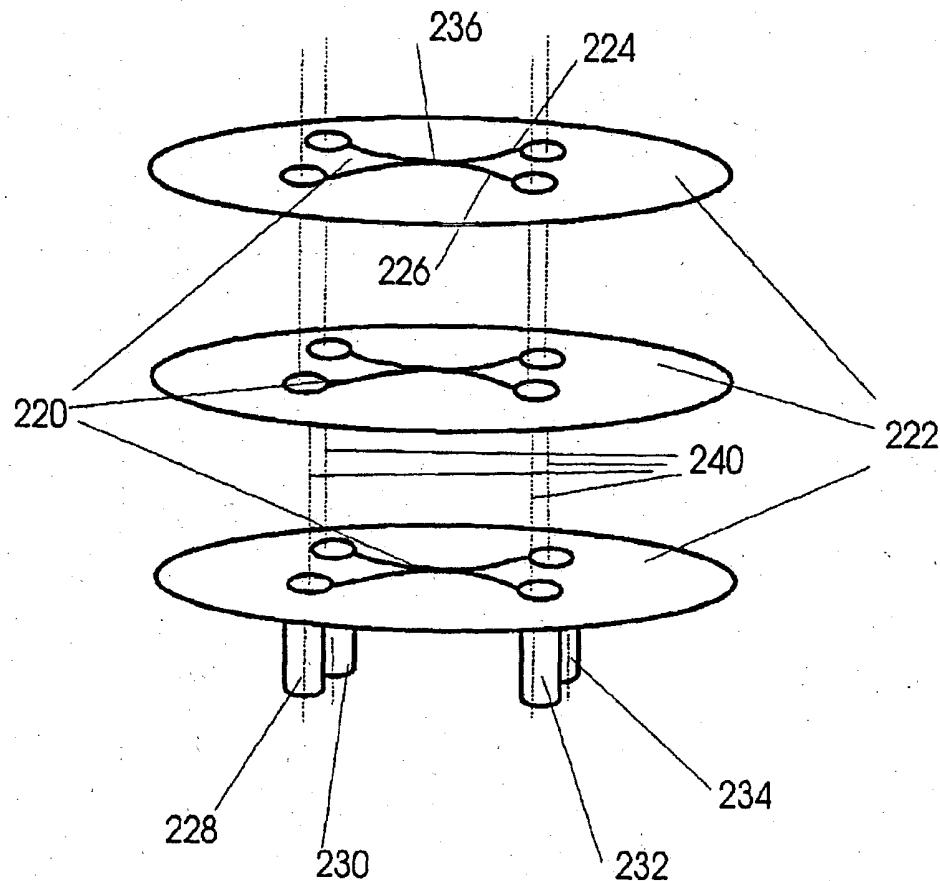


Figure 14

【手続補正書】特許法第184条の8第1項

【提出日】1996年10月4日

【補正内容】

請求の範囲（請求の範囲翻訳文第30頁～第38頁）

請求の範囲

1. 第1不混和性流体と及び第2不混和性流体の間での拡散移動の工程を実施するための装置であって、第1及び第2不混和性流体のそれぞれの層流を通過させることができる第1及び第2流路（11、12）を具備し、前記流路の一部が互いに隣接して配置されて流体がそこに安定な開放界面（40、57）を形成し得るような領域（16）で互いに連通し、界面領域において少なくとも第1流路が10～500マイクロメートルの範囲内の界面に対して法線方向の幅を有し、そして前記界面領域の外側の第1及び第2流路（15、17）が分かれていて第1流体及び第2流体が混合することなく界面領域内に流入及び界面領域から流出するようにすることを特徴とする装置。

2. 第2流体流路が10～500マイクロメートルの範囲内の界面に対して方向の幅を有する請求項1記載の装置。

3. 第1流体から第1流体とは不混和性の第2流体への存在物の拡散移動の工程を実施するための装置であって、第1及び第2不混和性流体のそれぞれの層流を通過させることができる第1及び第2流路（11、12）を具備し、溝の一部が、互いに隣接して配置され、且つ流体がそこに安定な開放界面を形成し得るような領域（16）で互いに連通し、上記界面領域に隣接し、且つ、界面に対して法線方向の少なくとも第1流路の幅（1）が不等式：

$$1^2 < D \cdot t \cdot x^{-1}$$

（式中、Dは第1流体内の移動する存在物の拡散係数であり、tは流体部分が界面領域に位置を占める0.1～100秒の時間であり、x

は0.005以上の定数である）により決定され、そして前記界面領域の外側の第1及び第2流路（15、17）が分かれていて第1流体及び第2流体が混合することなく界面領域内に流入及び界面領域から流出するようにすることを特徴とする

装置。

4. 上記界面領域に隣接し、界面に対して法線方向の第2流路の幅(1)が以下の不等式：

$$l^2 < D \cdot t \cdot x^{-1}$$

(式中、Dは第2流体中の移動する存在物の拡散係数であり、tは流体部分が界面領域に位置を占める0.1~100秒の時間であり、xは0.005以上の定数である)により決定される請求項3記載の装置。

5. xが0.01以上の値を有する請求項3又は4のいずれか一項に記載の装置。

6. xが0.1以上の値を有する請求項3又は4のいずれか一項に記載の装置。

7. 拡散係数Dが $10^{-13} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1} \sim 10^{-9} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ の値を有する請求項3~6のいずれか一項に記載の装置。

8. 拡散係数Dが $10^{-11} \sim 10^{-10} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ の値を有する請求項7記載の装置。

9. 流体流れに対して法線方向の界面領域の高さが5~200マイクロメートルである請求項1~8のいずれか一項に記載の装置。

10. 界面領域の高さが5~30マイクロメートルである請求項9記載の装置。

11. 界面が流体流れに対して法線方向に隣接流路の高さの20分の1又はそれ以上の高さを有する請求項1~10のいずれか一項に記載の装置。

12. 界面を横切る第1及び第2液体間の差圧の範囲に対して界

面を安定化させるために、第1流路の表面と第2流路の表面が異なる湿潤特性を有する異なる材料(31、32、33)から成る請求項1~11のいずれか一項に記載の装置。

13. 2つの流体間の界面を横切る差圧の範囲に対して界面を安定化させるために界面領域内の流路表面が界面の所望の位置に隣接して等高を示す(18、19)請求項1~12のいずれか一項に記載の装置。

14. 第1及び第2流路が共通支持体(13)の表面に溝として蝕刻されるか別の方法で形成され、そして、第1及び第2流路を溝に限定するためにプレート部材(14)が支持体の表面に固定された請求項1~13のいずれか一項に記載の装置。

15. 第1及び第2流路が形成された反対面を有する第1及び第2支持体部材(13、34)を含む請求項1~13のいずれか1項に記載の装置。

16. 第1流路が第1支持体部材の表面に溝又はくぼみとして形成され、第2流路が第2支持体部材の表面に溝又はくぼみとして形成され、上記表面が互いに向かい合うように配置され、上記流路が少なくとも部分的に重なり合わさって界面領域(16;120、121)を画定している請求項15記載の装置。

17. 第1及び第2流路を形成する上記溝又はくぼみが互いに部分的に分岐して溝又はくぼみの寸法より小さい寸法の界面領域(120、121)を画定している請求項16記載の装置。

18. 第1及び第2支持体部材が、所定距離(160、162)の間隔を置いて互いに平行に配置され、且つ、開口部の各第1及び第2列(164、166)を具備し、列を成す開口部を互いに整合させ、それにより整合している開口部間に延びる第1流体流路(178)と支持体部材間に平行に延びる第2流体流路(176)とを

画定する請求項15記載の装置。

19. 第1流体と第2流体(142、180)の間の1つ以上の界面が界面領域に存在するように第2流体流路が形成され、そして、界面領域における第1流路の幅は、第1流路が最も近い界面からそれに法線方向で(i)10~500マイクロメートル以内、又はそれに法線方向で(ii)不等式 $l^2 < D \cdot t \cdot x^{-1}$ (式中、記号は前記と同様である)で決定される距離(1)より遠くないように存在するようなものである装置。

20. 第3流体を有する第3流路(140)を具備し、第1及び/又は第2及び/又は第3流体間に所定の界面を提供するための1つ又はそれ以上の界面領域(142)が提供された請求項1~19のいずれか1項に記載の装置。

21. 第3流体流路が第1及び/又は第2流体流路と同じ寸法で画定された請求項20記載の装置。

22. 検知するか、モニタリングするか及び/又は電場、磁場又は電磁場を1つ又はそれ以上の流体に印加するために流路内に又は流路に隣接して取り付けら

れる電極手段（a, b, c）を具備する請求項1～21のいずれか一項に記載の装置。

23. 多数の処理加工素子（194n、210、236）を具備し、各処理加工素子が請求項1～22のいずれか一項に記載の装置を構成する多量の第1及び第2不混和性流体を処理加工するための系。

24. 流体を各処理加工素子の入口から出口に供給するためのマニホールド手段（240）を具備する請求項23記載の系。

25. 上記処理加工素子が一連の積層した支持体（222）上に形成されたものであり、各処理加工素子の第1及び第2流路がこの積層した支持体を通して延びる流体口と連通している請求項24記

載の系。

26. 第一組の第1流体流路（202）及び第二組の第2流体流路（204）を具備し、第1流体流路に対してはその長さ方向に沿って間隔を置いて配置された一連の界面領域（210）が存在するように組の流路が第2流体流路と連通し合い、その逆も成り立つ請求項23記載の系。

27. 第1及び第2の重ね合わされた支持体（206、208）を具備し、第一組の第1流体流路が1つの支持体の表面に形成され、第二組の流体流路が第2支持体の接触面に配置された請求項26記載の系。

28. 第2流体流路がジグザグの、曲がりくねった又は渦巻き状の形状（190）を有して第1流体流路（192）の長さに沿った一連の界面領域（194n）に第1流体流路を画定する請求項28記載の系。

29. 第1不混和性流体と第2不混和性流体の間の拡散移動の工程を実施する方法であって、

1) 互いに隣接して配置された部分を有し、且つ、流体が互いに接触し得る領域（16）で互いに連通する第1及び第2流路（11、12）を提供すること、ただし、界面領域内の少なくとも第1流路が界面に法線方向に10～500マイクロメートルの幅を有する；

2) 少なくとも前記領域で両流体の流れが本質的に層状であり、且つ、安定な

開放界面が流体間に形成されるように、前記第1及び第2流路のそれぞれに第1及び第2不混和性流体を流すこと；

3) 流体内の拡散輸送により流体間の前記界面で所望の存在物の実質的な移動を可能にさせること；そして

4) 流体を混合させずにそれぞれの流路の界面領域に流体を流

入させ、そして界面領域から流出させること；

を含む方法。

30. 第1流体から第1流体と不混和性の第2流体への少なくとも1つの拡散性存在物を移動させる工程を実施する方法であって、

1) 流体界面が互いに接触し得る領域(16)で互いに連通する第1及び第2流路(11、12)を提供すること；

2) 少なくとも界面領域で両流体が本質的に層状であり、且つ、安定な開放界面が流体間に形成されるように、前記第1及び第2流路のそれぞれに第1及び第2流体を流すこと；

3) 界面領域で移動し得る前記拡散性存在物の総量の少なくとも1%が移動する場合には、以下の不等式：

$$l^2 < D \cdot t \cdot x^{-1}$$

(式中、Dは第1流体中の拡散性存在物の拡散係数であり、tは界面領域に第1流体の一部が位置を占める0.1~100秒の時間であり、xは0.005以上の定数であり、lは前記界面領域に隣接し界面に対して法線方向の第1溝の幅である)
が適用され；そして

4) 流体を混合させずにそれぞれの流路の界面領域に流体を流入させ、そして界面領域から流出させること；

を特徴とする方法。

31. 第2流体及び第2流体流路に関しては、以下の不等式：

$$l^2 < D \cdot t \cdot x^{-1}$$

(式中、Dは第2次流体中の拡散性存在物の拡散係数であり、lは前記界面領域に隣接し、界面に対して法線方向の第2流路の幅である)

適用できる請求項30記載の方法。

32. x の値が0.01以上である請求項30又は31のいずれか一

項に記載の方法。

33. x の値が0.1以上である請求項30又は31のいずれか一項に記載の方
法。

34. 拡散係数Dが $10^{-13} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1} \sim 10^{-9} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ の値を有する請求項30～33
のいずれか一項に記載の方法。

35. 拡散係数Dが $10^{-11} \sim 10^{-10} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ の値を有する請求項34記載の方法。

36. 界面領域、界面に対して法線方向の第2流路の幅が10～500マイクロメ
ートルである請求項29に記載の方法。

37. 界面領域で1つ以上の界面(142、180)が第1流体流路により形
成されるように第2流路が形成され、界面領域における第1流体流路の幅が、第
1流路の一部が(i) 10～500マイクロメートル以内、又は(ii) 上記不等式
で決定される距離(1)より界面から遠くにないよう存在するようなものであ
る請求項30～36のいずれか一項に記載の方法。

38. 第3流体流路(140)を含み、第1、第2及び／又は第3流体流路間
に選択された界面領域(142)を提供し、前記第3流体流路に第3流体を流し
て、そこを通る少なくとも1つの所定の存在物を拡散させるために第1、第2及
び第3流体間に選択された界面を形成させる請求項29～37のいずれか一項に
記載の方法。

39. 流体が、気体、超臨界流体及び液体から選択され、選択された流体が互
いに不混和性である請求項29～38のいずれか一項に記載の方法。

40. 第1、第2及び第3流体が各々液体である請求項39記載の方法。

41. 第1流体が水性液体溶液であり、且つ、第2流体が有機液体であるか、
又はその逆である、請求項29～40のいずれか一項

に記載の方法。

42. 工程が水性溶液から有機液体への又はその逆の少なくとも1つの溶質の

溶媒抽出である請求項41記載の方法。

43. 1つ又はそれ以上の流体が流路内で又は流路に隣接して電極手段により検知又はモニタリングされる請求項29~42のいずれか一項に記載の方法。

44. 電場、磁場又は電磁場を1つ又はそれ以上の流体に印加することを含む請求項30~45のいずれか一項に記載の方法。

45. 流体流れに対して法線方向の界面領域の高さが5~200マイクロメートルである請求項29~44のいずれか一項に記載の方法。

46. 前記第1界面領域の高さが5~30マイクロメートルである請求項45記載の方法。

47. 界面が、流体流れに対して法線方向に、隣接する流路の高さの20分の1又はそれ以上の高さを有する請求項29~46のいずれか一項に記載の方法。

48. 界面を横切る第1及び第2液体間の差圧の範囲に対して界面を安定化させるために、第1及び第2流路の表面が異なる湿潤特性を有する異なる材料(31、32、33)から成る請求項29~47のいずれか一項に記載の方法。

49. 2つの流体間の界面を横切る差圧の範囲に対して界面を安定化するために界面領域内の流路表面が界面の所望の位置に隣接して等高を示す(18、19)請求項29~48のいずれか一項に記載の方法。

50. 上記領域が単一処理加工素子を形成し、各処理加工素子内で流体を同時に処理加工し得る多数のこのような処理加工素子(194n、120、236)を提供する請求項29~49のいずれか一項に記載の方法。

一項に記載の方法。

5.1. 第一組の第1流体流路(202)及び第二組の第2流体流路(204)を具備し、第1流体流路に対してはその長さ方向に沿って間隔を置いて配置された一連の界面領域が存在するように前記第1及び二組の流路が第3流体流路と連通し合い(210)、その逆も成り立つ請求項50記載の方法。

52. 第2流体流路がジグザグの、曲がりくねった又は渦巻き状の形状(190)を有して第1流体流路の長さに沿った一連の界面領域(194)に第1流体流路(192)を画定している請求項50記載の方法。

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Inte.inal Application No.
PCT/GB 95/02489

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
IPC 6 B01D11/04 B01D61/28 G01N1/40		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)		
IPC 6 B01D G01N		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	FR,A,2 196 831 (TECHNICON INSTRUMENTS CORPORATION) 22 March 1974 cited in the application see page 1, line 1 - line 5 see page 1, line 38 - page 2, line 16 see page 2, line 38 - page 6, line 24 see page 8, line 29 - line 35; claims; figures	1,3,12, 13,23, 29,40-42
A	US,A,5 114 579 (DOREEN Y. TAKIGAWA) 19 May 1992 cited in the application see column 7, line 10 - line 53; figures 2,3 see column 5, line 26 - line 29	1,3,12, 13,23, 29,40-42
	—/—	—/—
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of box C.		<input checked="" type="checkbox"/> Patent family members are listed in annex.
* Special categories of cited documents :		
<ul style="list-style-type: none"> *'A' document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance *'E' earlier document but published on or after the international filing date *'L' document which may throw doubt on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) *'O' document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means *'P' document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed 		
<ul style="list-style-type: none"> *'T' later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention *'X' document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone *'Y' document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art. *'Z' document member of the same patent family 		
Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report	
7 February 1996	19.02.96	
Name and mailing address of the ISA	Authorized officer	
European Patent Office, P.O. 5818 Patentlaan 2 NL - 2230 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl Fax (+31-70) 340-3016	Van Belleghem, W	

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Inter. Appl. No.
PCT/GB 95/02489

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	DE,A,32 39 290 (CHIRANA VYZKUMNY USTAV ZDRAVOTNICKÉ TECHNIKY, KONCERNOVÁ UCEROVÁ ORG.) 21 July 1983 see claim 1; figures -----	
A	DE,A,20 39 051 (ERNST SCHÜTT JUN) 10 February 1972 see claim 5 -----	
A	US,A,4 208 284 (VICTOR PRETORIUS) 17 June 1980 -----	
A	US,A,4 789 468 (KAMALESH K. SIRKAR) 6 December 1988 -----	

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Int'l. Appl. No.
PCT/GB 95/02489

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)		Publication date
FR-A-2196831	22-03-74	DE-A-	2342324	21-03-74
		JP-A-	49060789	12-06-74
		NL-A-	7311167	26-02-74
US-A-5114579	19-05-92	NONE		
DE-A-3239290	21-07-83	NONE		
DE-A-2039051	10-02-72	NONE		
US-A-4208284	17-06-80	DE-A-	1598555	02-03-72
		GB-A-	1148661	
		GB-A-	1148662	
		US-A-	3493497	03-02-70
		US-A-	3796657	12-03-74
		BE-A-	690885	16-05-67
		CH-A-	507724	31-05-71
		DE-A-	1517944	02-04-70
		FR-A-	1506648	28-02-68
		GB-A-	1169523	05-11-69
		LU-A-	52522	07-02-67
		NL-A-	6617253	09-06-67
		US-A-	3694335	26-09-72
US-A-4789468	06-12-88	CA-A-	1271428	10-07-90
		US-A-	4997569	05-03-91
		US-E-	RE34828	17-01-95

フロントページの続き

(31) 優先権主張番号 9511904. 6
(32) 優先日 1995年6月12日
(33) 優先権主張国 イギリス(GB)
(81) 指定国 EP(AT, BE, CH, DE,
DK, ES, FR, GB, GR, IE, IT, LU, M
C, NL, PT, SE), AU, CA, CN, JP, K
R, RU, UA, US
(72) 発明者 ブル, アドリアン ジェームズ
イギリス国, マンチェスター エム 28
2ユアール, ウォースレー, リディング
フォールド, レーン 67
(72) 発明者 シンパー, アドリアン マーク
イギリス国, ケンブリッジ シーピー4
1エイチエックス, オフ キンバレー
ロード, バンハムズ クローズ 4
(72) 発明者 シャー, ジョン エドワード アンドリュ
イギリス国, ミドルセックス ユーピー3
1エイチエイチ, ヘイズ, ダウリー ロ
ード, セントラル リサーチ ラボラトリ
ーズ(番地なし)
(72) 発明者 ブレナン, デビット エドワード
イギリス国, ミドルセックス ユーピー3
1エイチエイチ, ヘイズ, ダウリー ロ
ード, セントラル リサーチ ラボラトリ
ーズ(番地なし)
(72) 発明者 ターナー, ロバート エドワード
イギリス国, ミドルセックス ユーピー3
1エイチエイチ, ヘイズ, ダウリー ロ
ード, セントラル リサーチ ラボラトリ
ーズ(番地なし)
(72) 発明者 シンプソン, リチャード イAIN
イギリス国, ミドルセックス ユーピー3
1エイチエイチ, ヘイズ, ダウリー ロ
ード, セントラル リサーチ ラボラトリ
ーズ(番地なし)
(72) 発明者 ウエストウッド, リン
イギリス国, ブリストン ビーアール1
0エヌエル, ベンワーソン, セントラル
ドライブ 14

特表平10-507962

【公報種別】特許法第17条第1項及び特許法第17条の2の規定による補正の掲載

【部門区分】第2部門第1区分

【発行日】平成15年3月18日(2003.3.18)

【公表番号】特表平10-507962

【公表日】平成10年8月4日(1998.8.4)

【年通号数】

【出願番号】特願平8-513729

【国際特許分類第7版】

B01D 11/04

61/28

G01N 1/10

【F I】

B01D 11/04

Z

61/28

G01N 1/10

F

手続補正書

平成14年10月18日

(4) 明細書の第19頁第1~2行の「 $\Delta P_1 = y d_1 / (2 \cos \theta) < (P_1 - P_2) < \Delta P_2 = y d_2 / (2 \cos \theta)$ 」を「 $\Delta P_1 = (2 \cos \theta) / y d_1 < (P_1 - P_2) < \Delta P_2 = (2 \cos \theta) / y d_2$ 」に補正します。

特許庁長官 太田 信一郎 殿

1. 事件の表示

平成8年特許願第513729号

2. 補正をする者

名称 セントラル リサーチ ラボラトリーズ リミテッド

3. 代理人

住所 〒105-8423 東京都港区虎ノ門三丁目5番1号 虎ノ門37番ビル
青和特許法律事務所 電話 03-5470-1900

氏名 弁理士(7751)石田 敬



4. 補正対象書類名

明細書

5. 補正対象項目名

明細書

6. 補正の内容

(1) 明細書の第18頁第1行の「 $\Delta P = y d / (2 \cos \theta)$ 」を「 $\Delta P = (2 \cos \theta) / y d$ 」に補正します。

(2) 明細書の第18頁第10~11行の「 $\Delta P_1 = y d / (2 \cos \theta_1)$ 」を「 $\Delta P_1 = (2 \cos \theta_1) / y d$ 」に補正します。

(3) 明細書の第18頁第12行の「 $\Delta P_2 = y d / (2 \cos \theta_2)$ 」を「 $\Delta P_2 = (2 \cos \theta_2) / y d$ 」に補正します。